

THÈSE

PRÉSENTÉE

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE NANCY

CENTRE DE RECHERCHES RADIOGÉOLOGIQUES

POUR OBTENIR

le Titre de Docteur de l'Université
GEOLOGIE NUCLÉAIRE

PAR

Pierre RICHARD

ÉTUDE DE L'ÉQUILIBRE RADIOACTIF
DANS QUELQUES MINÉRAUX ET MINÉRAIS
URANIFÈRES PAR SPECTROMÉTRIE ALPHA

Soutenue publiquement le 25 Juin 1969 devant la Commission d'Examen

M. le Doyen M. ROUBAULT, Membre de l'Institut	Président
M. le Professeur R. COPPENS	} Examineurs
M. le Professeur P. BLAZY	
M. le Professeur G. JURAIN	



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41551914_0014

THÈSE

PRÉSENTÉE

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE NANCY

CENTRE DE RECHERCHES RADIOGÉOLOGIQUES

POUR OBTENIR

le Titre de Docteur de l'Université
GEOLOGIE NUCLÉAIRE

PAR

Pierre RICHARD

ÉTUDE DE L'ÉQUILIBRE RADIOACTIF
DANS QUELQUES MINÉRAUX ET MINÉRAIS
URANIFÈRES PAR SPECTROMÉTRIE ALPHA

Soutenue publiquement le 25 Juin 1969 devant la Commission d'Examen

M. le Doyen M. ROUBAULT, Membre de l'Institut

Président

M. le Professeur R. COPPENS

M. le Professeur P. BLAZY

M. le Professeur G. JURAIN

} Examineurs



ANNEE SCOLAIRE 1968/1969

DOYEN : M. AUBRYASSESEUR : M. GAYDoyens honoraires : MM. CORNUBERT - ROUBAULT.Professeurs honoraires : MM. RAYBAUD - LAFFITTE - LERAY - JOLY - LAPORTE - EICHBORN - CAPELLE - GODEMENT - DUBREIL - L. SCHWARTZ - DIEUDONNE - DE MALLEMAN - LONGCHAMBON - LETORT - DODE - GAUTHIER - GOUDET - OLMER - CORNUBERT - CHAPELLE - GUERIN - WAHL -Maîtres de Conférences honoraires : MM. LIENHART - PIERRET - Mlle MATHIEU.PROFESSEURS

MM. ROUBAULT	Géologie	GAYET	Physiologie
VEILLET	Biologie Animale	HADNI	Physique
BARRIOL	Chimie Théorique	+ BASTICK	Chimie
BIZETTE	Physique	DUCHAUFOR	Pédologie
GUILLIEN	Electronique	GARNIER	Agronomie
LEGRAS	Mécanique Rationnelle	NEEL	Chimie Organique Indust.
BOLFA	Minéralogie	BERNARD	Géologie Appliquée
NICLAUSE	Chimie	+ CHAMPIER	Physique
FAIVRE	Physique Appliquée	+ GAY	Chimie Biologique
AUBRY	Chimie Minérale	STEPHAN	Zoologie
COPPENS	Radiogéologie	+ CONDE	Zoologie
DUVAL	Chimie	+ WERNER	Botanique
FRUHLING	Physique	EYMARD	Calcul Différentiel & Intégral
HILLY	Géologie	LEVISALLES	Chimie Organique
LE GOFF	Génie Chimique	FELDEN	Physique
SUHNER	Physique Expérimentale	+ GOSSE	Mécanique Physiquz
CHAPON	Chimie Biologique	+ DAVOINE	Physique (ENSMIN)
HEROLD	Chimie Minérale Indust.	HORN	Physique (1° Cycle)
SCHWARTZ B.	Exploitation Minière	+ ROCCI	Géologie
MALAPRADE	Chimie	+ Mme LUMER	Mathématiques
MANGENOT	Botanique	DELPUECH	Chimie physique
N...	Chimie Biologique		
N...	Mécanique Appliquée		
N...	Chimie Physique		
N...	Analyse Supérieure		
N...	Méthodes Mathématiques de la Physique		
N...	Mécanique Rationnelle		

(+) - Professeur titulaire à titre personnel.

PROFESSEURS SANS CHAIRE

Mme BASTICK	Chimie P.C. EPINAL	MM. FLECHON	Physique P.C.
MM. GUDEFIN	Physique	Mle HUET	Mathématiques C.B.G.
VUILLAUME	Psychophysiologie	VIGNES	Métallurgie
FRENTZ	Biologie Animale	BALESDENT	Thermodynamique, Chimie Appliquée (ENSIC)
MARI	Chimie (ISIN)	BLAZY	Minéralogie Appliquée (ENSG)
AUROUZE	Géologie	JANOT	Physique P.C. EPINAL
DEVIOT	Physique du Solide	CACHAN	Entomologie Appliquée (ENSA)

MAITRES DE CONFERENCES

MM. JACQUIN	Pédologie et Chimie agricoles	MM. BAVEREZ	Chimie (ENSIC)
MAINARD	Physique M.P.	CHAMBON	Exploitation Minière (Mines)
MARTIN	Chimie P.C.	HUSSON	Physique
PAULMIER	Mécanique Expérimentale	WEISSLINGER	Physique
PROTAS	Minéralogie	GERL	Physique
JOZEFOWICZ	Physicochimie	ROQUES	Chimie Minérale
JURAIN	Géologie C.B.G.	PERRIER	Mathématiques
RIVAIL	Chimie Appliquée (CUCES)	N...	Mécanique des fluides (ISIN)
VILLERMAUX	Génie Chimique	N...	Mécanique (ISIN)
METCHE	Biochimie Appliquée (Brasserie)	N...	Mathématiques
PAIR	Mathématiques Appliquées	N...	Mathématiques P.C.
BAUMANN	Physique 1er Cycle	N...	Mathématiques C.G.G.
DURAND	Physique	N...	Physiologie Animale
GRANGE	Physique (ISIN)	N...	Mathématiques M.P.
DEPAIX	Probabilités et Statistiques		

CHARGES D'ENSEIGNEMENT

MM. AMARIGLIO, COEURE, DAVRAINVILLE, GILORMINI, GIRARDEAU, HILY, MAURIN, NOVERRAZ, OVAERT, RUYER, WEBER.

A mon maître,

Monsieur René COPPENS
Professeur à la Faculté des Sciences
de l'Université de Nancy

Hommage de ma respectueuse reconnaissance

A ma femme,
A mes enfants Douglas, Patrick, Max, Geoffroy et Norbert,

Témoignage de mes sentiments affectueux.

A la mémoire de mon père,
A ma mère,
A Marcelle et Paul,

Témoignage de profonde affection
et de respectueux souvenirs.

AVANT-PROPOS

Monsieur le Doyen Marcel ROUBAULT, Membre de l'Institut, Directeur de l'Ecole Nationale Supérieure de Géologie Appliquée et de Prospection Minière et du Centre de Recherches Radiogéologiques, me fait une seconde fois l'insigne honneur de présider mon jury. Je vous prie, Monsieur le Doyen, de trouver ici l'expression de ma très respectueuse gratitude.

Monsieur le Professeur René COPPENS, Directeur-Adjoint du Centre de Recherches Radiogéologiques, a dirigé mes travaux en spectrométrie alpha ; j'ai pu ainsi bénéficier de son enseignement et de sa grande expérience des rayonnements nucléaires et du rayonnement alpha en particulier. Monsieur COPPENS avait déjà résolu le problème de la détermination des activités des différents radioisotopes émetteurs alpha des roches quart., dans sa thèse de Doctorat ès Sciences Physiques, il mesurait au microscope les longueurs des traces alpha dans l'émulsion photographique. Il m'a confié un appareillage moderne grâce auquel j'ai pu mener à bien cette étude. Je vous prie, Monsieur COPPENS, de trouver ici l'expression de mon plus grand dévouement et de ma très sincère reconnaissance.

Monsieur Pierre BLAZY, Professeur à la Faculté des Sciences et Directeur-Adjoint de l'Ecole Nationale Supérieure de Géologie a toujours été pour moi une grande source d'encouragements et de bons conseils. Il a su me montrer tout l'intérêt que présente la connaissance analytique des constituants des minerais. Je vous dois, Monsieur BLAZY, une reconnaissance totale particulière pour le soutien moral que vous m'avez toujours donné, et vous prie de trouver ici l'expression de ma profonde gratitude.

Monsieur Georges JURAIN, Professeur à la Faculté des Sciences, qui fut mon premier maître en spectrométrie gamma, a continué à me faire bénéficier de sa grande expérience des nombreuses techniques de radiométrie et du fruit de ses recherches dans le domaine de l'équilibre radioactif,

tant par la méthode statistique de détermination des longueurs de traces alpha dans l'émulsion nucléaire, que par la spectrométrie de parcours des alpha. Les résultats de ce travail appartiennent en grande partie à Monsieur JURAIN qui m'a toujours prêté son concours et donné ses conseils, je vous demande, Monsieur JURAIN, d'accepter ici mes plus sincères remerciements.

Monsieur Pierre PERRIN, Secrétaire Général de l'Ecole Nationale Supérieure de Géologie, m'a toujours encouragé dans mon travail, tant par ses conseils d'ordre humain que par les facilités matérielles. Je l'en remercie vivement et lui témoigne toute ma reconnaissance.

Je dois une reconnaissance toute particulière à Madame Claudine CANIVET pour le concours précieux qu'elle a apporté dans la préparation des sources minces, dans les calculs et la correction de mon manuscrit. Je prie Madame CANIVET d'accepter mes hommages les plus respectueux et toute ma reconnaissance.

Monsieur Claude FAYE a été pour moi un collaborateur précieux. En plus de la réalisation des schémas et les graphiques contenus dans ce travail, il m'a donné son concours et ses conseils pour les problèmes de réalisations techniques et d'organisation. Je l'en remercie vivement.

Que Mademoiselle Denise UBRICH, qui s'est chargée des travaux de dactylographie, trouve ici ma plus grande reconnaissance pour sa minutie et son dévouement.

Monsieur Jean-Marc STUSSI, attaché de recherches du C.N.R.S. au Centre de Recherches Radiogéologiques, m'a toujours apporté son concours et donné ses conseils sur tous les problèmes de minéralogie. Collaborateur bienveillant et critique averti, Monsieur STUSSI a été pour moi d'un soutien moral très apprécié. Je lui témoigne ma plus sincère sympathie.

Monsieur KOSZTOLANYI, Chef du Service de spectrométrie de masse au Centre de Recherches Radiogéologiques a toujours été pour moi un interlocuteur intéressant pour les problèmes concernant l'équilibre. Je l'en remercie très vivement, et lui témoigne ma sympathie.

Monsieur VACASSY, Monsieur et Madame MAGNOL, Chefs du service intérieur du Centre de Recherches Radiogéologiques, m'ont toujours facilité les problèmes administratifs et matériels. Qu'ils veuillent bien accepter mes remerciements.

Messieurs HOUOT, CASES et VALENCE, de l'Usine-Pilote de l'Ecole Nationale Supérieure de Géologie, m'ont toujours bien accueilli dans leurs laboratoires et prodigué leurs conseils pour tous les problèmes concernant la sédimentation. Qu'ils veuillent bien accepter mes sincères remerciements.

Monsieur CARRAT, Ingénieur en Chef du Centre de Recherches Radiogéologiques, a grandement facilité mon travail en m'accordant un soutien efficace dans les problèmes administratifs et matériels.

Mademoiselle Nicole SCHMITZ et Mademoiselle BOURQUARD m'ont souvent aidé dans les travaux de dactylographie. Je les remercie bien sincèrement pour leur soin et leur gentillesse habituels.

Que Madame LEBON, Mademoiselle KETTERLE, Messieurs RENARD, MAGNE, RANCHIN, VOINOT, JEAGY, HASSKO, HELLE du Centre de Recherches Radiogéologiques, collaborateurs de tous les jours, trouvent ici l'expression de ma sympathie.

Je n'aurais garde d'oublier Monsieur CUNY et Madame FERRARI, qui ont permis la réalisation matérielle de ce mémoire.

TABLE DES MATIERES

	<u>Pages</u>
<u>CHAPITRE I</u>	
<u>LES FAMILLES RADIOACTIVES ET L'EQUILIBRE RADIOACTIF</u>	... 1
I - <u>FORMATION DES FAMILLES RADIOACTIVES</u>	... 1
1°) Etude théorique des désintégrations successives	... 1
2°) Maximum d'activité du produit de filiation	... 8
3°) Variation du rapport des activités - Equilibre radioactif	11
II - <u>ETUDE THEORIQUE DE L'EQUILIBRE RADIOACTIF DANS LES MINERAUX</u>	
<u>DE L'URANIUM</u>	... 17
1°) Les groupes de ROSHOLT	... 17
2°) L'équilibre radioactif dans la nature	... 24
a) Le temps	... 24
b) Les caractères physico-chimiques	... 25
<u>CHAPITRE II</u>	
<u>LES SEMI-CONDUCTEURS</u>	... 31
I - <u>LES SEMI-CONDUCTEURS</u>	... 31
1°) Généralités	... 31
2°) Comportement électrique du germanium et du silicium	... 33
a) Conductibilité	... 38

b) Considérations théoriques	...	38
II - <u>LES ELECTRONS LIBRES - LE Puits DE POTENTIEL</u>	...	43
III - <u>THEORIE DES BANDES</u>	...	49
1°) Répartition des électrons en fonction de l'énergie	...	58
2°) Niveau de Fermi dans un semi-conducteur intrinsèque...		60
3°) Niveau de Fermi dans un semi-conducteur dopé	...	61
a) dans un semi-conducteur du type N	...	61
b) dans un semi-conducteur du type P	...	63

CHAPITRE III

<u>LA DETECTION DES PARTICULES ALPHA</u>	...	66
I - <u>METHODES DE DETECTION DES RAYONS ALPHA</u>	...	66
1°) L'émulsion photographique	...	66
2°) Méthode des scintillations	...	68
3°) Méthode de la chambre humide - chambre de Wilson	...	69
4°) Méthode des chambres d'ionisation	...	70
5°) Compteurs du type GEIGER	...	71
6°) Les détecteurs à semi-conducteur	...	72
II - <u>LE DETECTEUR & JONCTION P.N.</u>	...	82
1°) Détection d'une particule	...	82
2°) Qualités d'un détecteur de particules chargées	...	83

	<u>Pages</u>
a) Linéarité de réponse	... 83
- absorption	... 83
- profondeur de la zone désertée	... 86
b) Résolution en temps	... 87
- durée de vie ou temps de vie des porteurs de charge	... 88
c) Résolution en énergie	... 90
d) Rendement nucléaire	... 91
3°) Valeur et forme de l'impulsion électrique fournie par le détecteur	... 91
a) Champ électrique dans la zone désertée	... 91
b) Charge induite par un électron se déplaçant depuis son lieu de naissance jusqu'à l'électrode collectrice +	... 92
- vitesse de l'électron dans le champ	... 92
- charge induite sur l'électrode	... 93
c) Nombre de paires électron-trou créées par une particule	... 94
4°) L'impulsion de tension	... 97

CHAPITRE IV

<u>APPLICATIONS et RESULTATS</u>	... 99
----------------------------------	--------

I - <u>ECHANTILLON-SOURCE</u>	... 99
-------------------------------	--------

1°) La projection ou pulvérisation électrostatique	... 100
--	---------

2°) Le dépôt électrolytique	...	100
3°) La vaporisation sous vide	...	100
4°) Les Frottis	...	100
5°) Les dépôts sédimentés	...	100
 II - <u>SPECTRE DES EMISSIONS ALPHA D'UNE SOURCE EPAISSE</u>	...	103
 III - <u>INSTALLATION SPECTROMETRIQUE</u>	...	111
1°) Chambre à vide	...	111
- distance source-détecteur	...	111
2°) Le préamplificateur sensible à la charge	...	114
 IV - <u>DETERMINATION DES ACTIVITES</u>	...	118
 V - <u>RESULTATS</u>	...	121
1°) Minéraux uranifères en équilibre radioactif	...	122
a) Pechblende d'Ambert - Le Poyet (Forez)	...	122
b) Pechblende des Brugeauds - Limousin	...	123
2°) Minéraux de formation récente	...	125
a) Chalcopite des Bois-Noirs (Forez)	...	125
b) Uranopilite des Bois-Noirs (Forez)	...	126
c) Minéral jaune des Bois-Noirs (Forez)	...	127
d) Uranopilite de la Commanderie (Vendée)	...	128
3°) Minéraux remaniés	...	129
Autunite de Saint-Symphorien-de-Marmagne (Autunois)	...	129

Pages

4°) Les rapports U^{234}/U^{238}

... 132

CONCLUSIONS GENERALES

... 134

BIBLIOGRAPHIE : hors-texte, I - V.

La connaissance de l'état d'équilibre ou de déséquilibre radio-actif des minéraux et des minerais uranifères présente un intérêt évident dans tous les problèmes touchant la géochimie de l'uranium, sa prospection et la géochronologie par la méthode des plombs radiogéniques.

En ce qui concerne la géochimie, il est intéressant, pour le géologue de connaître l'histoire de la vie chimique dans la nature de l'uranium et de chacun de ses descendants.

La prospection des gisements uranifères par les méthodes radio-métriques est faite dans la majorité des cas à l'aide de compteurs munis de détecteurs de rayonnements gamma. Or, des trois isotopes naturels de l'uranium, seul l' ^{235}U est un émetteur gamma (de faible énergie). Mais cet isotope ne représente que 0,7 % de l'uranium naturel total. Par contre, les descendants de l' ^{238}U avec toute la filiation du radium (^{226}Ra) sont des émetteurs gamma très énergiques ($^{214}_{83}\text{Bi}$ ou RaC). Par conséquent, une forte activité gamma n'est pas obligatoirement l'indice d'une forte concentration uranifère. Aussi, en associant intensité d'informations radiométriques et concentration d'uranium, le prospecteur présuppose déjà un certain état d'équilibre.

La géochronologie permet de déterminer un "âge" en considérant les teneurs en uranium et en plombs radiogéniques en supposant que l'élément stable dosé (^{206}Pb , ^{207}Pb) est réellement issu, par filiation, de l'uranium de référence.

Il est donc intéressant, en vue de l'interprétation de l'"âge" physique obtenu de connaître l'état d'équilibre de la famille.

Dans ce travail, nous n'avons pas considéré la spectrométrie des radioisotopes émetteurs alpha de la famille de l' ^{235}U car le rapport $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ est très faible (0,007). Nous avons porté notre étude uniquement sur la famille de l' ^{238}U -Radium en tenant compte toutefois des corrections qu'implique la faible activité de l' ^{235}U .

CHAPITRE I

LES FAMILLES RADIOACTIVES ET L'EQUILIBRE RADIOACTIF

I - FORMATION DES FAMILLES RADIOACTIVES

1°) Etude théorique des désintégrations successives

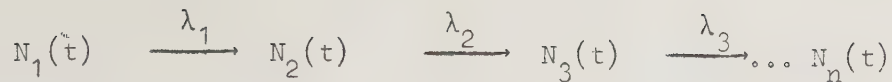
Les éléments radioactifs que l'on rencontre dans la nature sont tous, à l'origine, issus de noyaux instables qui se transforment en d'autres noyaux de masse et de charge voisines par des réactions exo-énergétiques.

Un corps radioactif se détruit en donnant naissance à un élément qui peut être stable ou radioactif.

Le corps radioactif formé engendre à son tour un autre corps jusqu'à ce que l'on arrive à une substance stable non radioactive. Il se constitue ainsi une famille radioactive, chaque désintégration α faisant reculer l'élément de deux cases dans le tableau périodique et diminuer son nombre de masse de quatre unités ; chaque désintégration β faisant, au contraire, avancer l'élément d'une case en maintenant constant son nombre de masse.

Soit un élément radioactif 1 de période T_1 et de constante radioactive $\lambda_1 = \frac{\log 2}{T_1} = \frac{0,693}{T_1}$.

Cet élément 1 donne naissance à l'élément 2 (T_2, λ_2) qui à son tour, donne naissance à l'élément 3 (T_3, λ_3) et ainsi de suite.



Si N_1 est le nombre d'atomes de l'élément 1 à un instant quelconque, sa vitesse de décroissance sera :

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1$$

Cette vitesse de destruction de l'élément 1, est aussi la vitesse de formation, de naissance, de l'élément 2 ; c'est aussi l'activité A_1 de l'élément 1.

L'élément 2 étant aussi radioactif, son bilan sera :

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \quad (1)$$

et si $N_1(0)$ est le nombre d'atomes de l'élément 1 présents à l'instant $t(0)$, l'équation (1) devient, avec $N_1(t) = N_1(0) e^{-\lambda_1 t}$,

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1(0) e^{-\lambda_1 t} - \lambda_2 N_2$$

$$\text{ou} \quad \frac{dN_2}{dt} + \lambda_2 N_2 - \lambda_1 N_1(0) e^{-\lambda_1 t} = 0 \quad (2)$$

L'équation différentielle (1) exprime clairement que la vitesse de transformation résulte de l'apport des noyaux (2) issus de la désintégration de l'élément 1 diminué de la contribution due à la destruction de l'élément 2.

L'équation différentielle (2) est du premier ordre et on peut supposer qu'elle a une solution de la forme :

$$N_2 = U \cdot V$$

où U et V sont des fonctions de t.

En différenciant par rapport à t, on a :

$$\frac{dN_2}{dt} = U \frac{dV}{dt} + V \frac{dU}{dt} ; \text{ qui devient en remplaçant}$$

dans (2), $\frac{dN_2}{dt}$ par cette valeur :

$$\left(U \frac{dV}{dt} + V \frac{dU}{dt} \right) + \lambda_2 U \cdot V - \lambda_1 N_1(0) e^{-\lambda_1 t} = 0$$

Groupant les termes en U, on a :

$$U \left(\frac{dV}{dt} + \lambda_2 V \right) + N \frac{dU}{dt} - \lambda_1 N_1(0) e^{-\lambda_1 t} = 0 \quad (3)$$

On peut choisir arbitrairement V de façon à ce que l'expression entre parenthèses soit nulle :

$$\frac{dV}{dt} + \lambda_2 V = 0 \quad \rightarrow \quad \frac{dV}{dt} = -\lambda_2 V \quad - 4 -$$

ce qui donne $\frac{dV}{V} = -\lambda_2 dt$.

En intégrant, on a :

$$\int \frac{dV}{V} = \int -\lambda_2 dt$$

donc $\text{Log } V = -\lambda_2 t$

$$V = e^{-\lambda_2 t} \quad \text{et} \quad dV = -\lambda_2 e^{-\lambda_2 t} dt$$

Cette valeur de V nous permet, à partir de l'équation (3), d'obtenir une équation différentielle en U, car $\frac{dV}{dt} = -\lambda_2 e^{-\lambda_2 t}$, donc

$$U \left[-\lambda_2 e^{-\lambda_2 t} + \lambda_2 e^{-\lambda_2 t} \right] + e^{-\lambda_2 t} \frac{dU}{dt} - \lambda_1 N_1(0) e^{-\lambda_1 t} = 0$$

La parenthèse étant nulle, on a :

$$e^{-\lambda_2 t} \frac{dU}{dt} = \lambda_1 N_1(0) e^{-\lambda_1 t}$$

$$\frac{dU}{dt} = \frac{\lambda_1 N_1(0) e^{-\lambda_1 t}}{e^{-\lambda_2 t}} = \frac{\lambda_1 N_1(0) e^{-\lambda_1 t}}{[e^{-\lambda_2 t}]^{-1}}$$

$$= \lambda_1 N_1(0) e^{-\lambda_1 t} \cdot e^{\lambda_2 t}$$

et finalement,

$$dU = \lambda_1 N_1(0) e^{t(\lambda_2 - \lambda_1)} dt$$

expression qui, intégrée, donne :

$$\int \lambda_1 N_1(0) e^{t(\lambda_2 - \lambda_1)} dt = U = \frac{\lambda_1 N_1(0) e^{t(\lambda_2 - \lambda_1)}}{\lambda_2 - \lambda_1} + C$$

$$U = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N(0) e^{t(\lambda_2 - \lambda_1)} + C$$

Cette valeur de U et la valeur de V déjà trouvée plus haut, permet d'écrire, puisque $N_2 = UV$:

$$N_2 = \left[\frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1(0) e^{t(\lambda_2 - \lambda_1)} + C \right] \cdot e^{-\lambda_2 t}$$

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1(0) e^{-\lambda_1 t} + C e^{-\lambda_2 t} \quad (4)$$

La constante C est déterminée par la condition $N_2 = N_2(0)$ pour $t = 0$. En effet, les deux exponentielles sont égales à 1 si l'on fait $t = 0$:

$$N_2(0) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1(0) + C$$

et

$$C = N_2(0) - \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1(0)$$

De cette valeur de C portée dans l'expression (4), on tire immédiatement la valeur de N_2 :

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1(0) \left[e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t} \right] + N_2(0) e^{-\lambda_2 t} \quad (5)$$

Dans cette expression, le premier groupe de termes représente la croissance de l'élément, ou de la substance-fille à partir de la substance-mère ; le second terme représentant la contribution à un instant donné, des atomes de la substance-fille initialement présents.

CAS SPECIAL IMPORTANT

C'est le cas où la substance-fille n'existe aucunement à l'instant initial, c'est-à-dire $N(0) = 0$,

alors

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1(0) \left[e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t} \right] \quad (6)$$

en multipliant gauche et droite par $\frac{\lambda_2}{\lambda_1 N_1(0)}$

il vient

$$\frac{\lambda_2 N_2}{\lambda_1 N_1(0)} = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \left[e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t} \right] \quad (7)$$

$\lambda_2 N_2$ est l'activité de l'élément 2 à l'instant t et $\lambda_1 N_1(0)$ celle de l'élément 1 à l'instant $t = 0$. Sous cette forme, on rapporte l'activité de N_2 , à l'instant t , à l'activité initiale de N_1 .

De (7), on tire :

$$N_2 = N_1(0) \lambda_1 \left[\frac{e^{-\lambda_1 t}}{\lambda_2 - \lambda_1} - \frac{e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_2 - \lambda_1} \right]$$

ou encore
$$N_2 = N_1(0) \lambda_1 \left[\frac{e^{-\lambda_1 t}}{\lambda_2 - \lambda_1} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_1 - \lambda_2} \right]$$

Pour le corps 3, en poursuivant les calculs par la même méthode, on aurait :

$$N_3 = N_1(0) \lambda_1 \lambda_2 \left[\frac{e^{-\lambda_1 t}}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)} + \frac{e^{-\lambda_3 t}}{(\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)} \right]$$

et pour le corps 4 :

$$N_4 = N_1(0) \lambda_1 \lambda_2 \lambda_3 \left[\frac{e^{-\lambda_1 t}}{(\lambda_2 - \lambda_1) \dots (\lambda_4 - \lambda_1)} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{(\lambda_1 - \lambda_2) \dots (\lambda_4 - \lambda_2)} + \frac{e^{-\lambda_3 t}}{(\lambda_1 - \lambda_3) \dots (\lambda_4 - \lambda_3)} + \frac{e^{-\lambda_4 t}}{(\lambda_1 - \lambda_4) \dots (\lambda_3 - \lambda_4)} \right]$$

$$N_n = N_1(0) \lambda_1 \lambda_2 \dots \lambda_{n-1} \left[\frac{e^{-\lambda_1 t}}{(\lambda_2 - \lambda_1) \dots (\lambda_n - \lambda_1)} \dots + \frac{e^{-\lambda_{n-1} t}}{(\lambda_1 - \lambda_{n-1}) \dots (\lambda_n - \lambda_{n-1})} + \frac{e^{-\lambda_n t}}{(\lambda_1 - \lambda_n) \dots (\lambda_{n-1} - \lambda_n)} \right]$$

Mettons le premier membre de l'égalité sous la forme adoptée dans l'équation (7), c'est-à-dire, pour N_n , sous la forme $N_n \cdot \lambda_n / N_1(0) \lambda_1$ et le deuxième membre sous une forme ordonnée qui fera ressortir les facteurs sous forme d'une différence comme $\lambda_{\text{du rang}} - \lambda_{\text{des autres successivement}}$, il vient :

$$\frac{N_n \cdot \lambda_n}{N(0) \lambda_1} = (-1)^{n-1} \lambda_2 \lambda_3 \dots \lambda_n \left[\frac{e^{-\lambda_1 t}}{(\lambda_1 - \lambda_2) \dots (\lambda_1 - \lambda_n)} + \dots + \frac{e^{-\lambda_n t}}{(\lambda_n - \lambda_1) \dots (\lambda_n - \lambda_{n-1})} \right]$$

2°) Maximum d'activité du produit de filiation

Considérons le cas des éléments 1 et 2 :

L'activité du corps 2 est,

$$A_2 = \lambda_2 N_2(t) = N_1(0) \frac{\lambda_1 \lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \left[e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t} \right]$$

Il faut remarquer ici, que l'activité du corps 2 est $\lambda_2 N_2$ qui représente le nombre d'atomes 3 formés et non pas $\frac{dN_2}{dt}$.

Le rapport des activités des corps 1 et 2 est alors :

$$K = \frac{A_2}{A_1} \quad \text{avec } A_1 = \lambda_1 N_1 = \lambda_1 N_1(0) e^{-\lambda_1 t}$$

c'est-à-dire,

$$K = A_2 \left[\lambda_1 N_1(0) e^{-\lambda_1 t} \right]^{-1}$$

$$K = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \left[1 - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t} \right]$$

Cherchons le temps au bout duquel l'activité du corps 2 est maximale. Ce temps t_m sera celui qui annulera la dérivée :

$$\frac{dA_2}{dt} = \frac{d(\lambda_2 N_2)}{dt} = N_1(0) \frac{\lambda_1 \lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \left[\lambda_2 e^{-\lambda_2 t} - \lambda_1 e^{-\lambda_1 t} \right]$$

Cette dérivée s'annulera au temps t_m tel que :

$$\lambda_1 e^{-\lambda_1 t_m} - \lambda_2 e^{-\lambda_2 t_m} = 0$$

En passant aux logarithmes, on a :

$$\ln \lambda_1 - \lambda_1 t_m = \ln \lambda_2 - \lambda_2 t_m$$

$$t_m = \frac{\text{Ln } \lambda_2 / \lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1}$$

Ce qui donne,

$$A_1 = A_2 = \lambda_1 N_1(0) e^{-\lambda_1 t_m}$$

Il est commode d'exprimer le temps d'activité maximale en fonction des périodes T_1 et T_2 et des vies moyennes τ_1 et τ_2 , avec :

$$\tau = \frac{1}{\lambda} = \frac{T}{\text{Ln} 2} = 1,44 T$$

On a alors :

$$t_m = \tau_2 \frac{T_1}{T_1 - T_2} \text{Ln } \frac{T_1}{T_2}$$

$$t_m = \tau_1 \frac{T_2}{T_1 - T_2} \text{Ln } \frac{T_1}{T_2}, t_m \text{ étant positif et réel}$$

quelles que soient les valeurs relatives de T_1 et de T_2 .

L'activité A_2 de l'élément 2 est maximale pour $\frac{dN_2}{dt} = 0$, ce qui entraîne $A_1 = A_2$.

Cette égalité n'est d'ailleurs qu'éphémère et n'existe que pour $t = t_m$, on l'appelle l'Equilibre idéal.

avant le temps t_m , $t < t_m \rightarrow A_1 > A_2$

après le temps t_m , $t > t_m \rightarrow A_1 < A_2$

Au maximum d'activité de l'élément-fille (2), $A_1 = A_2$, le rapport des atomes présents $N_2(t_m)/N_1(t_m)$ est égal au rapport des périodes, c'est-à-dire :

$$\frac{N_2(t_m)}{N_1(t_m)} = \frac{T_2}{T_1} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2}$$

3°) Variations du rapport des activités - Equilibre radioactif

Premier cas : La période de l'élément "fille" est supérieure à celle de l'élément "mère"

$$a) \quad T_1 < T_2 \quad \text{ou} \quad \lambda_1 > \lambda_2$$

Soit K, le rapport de l'activité "fille" à l'activité "mère".
Le terme $\lambda_2 - \lambda_1$ devient négatif et l'exponentielle $e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t}$ devient $e^{(\lambda_1 - \lambda_2)t}$

$$\text{donc } K = \frac{\lambda_2}{\lambda_1 - \lambda_2} \left[e^{(\lambda_1 - \lambda_2)t} - 1 \right]$$

c'est-à-dire que le rapport des activités $\frac{A_2}{A_1}$ croît exponentiellement avec le temps t

b) Le cas extrême où $T_1 \ll T_2$; $\lambda_1 \gg \lambda_2$.

Nous avons pour $t \gg T_1$:

l'exponentielle $e^{-\lambda_1 t} \rightarrow 0$

et $A_2 = N_1(0) \frac{\lambda_2 \lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} [e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}]$ devient,

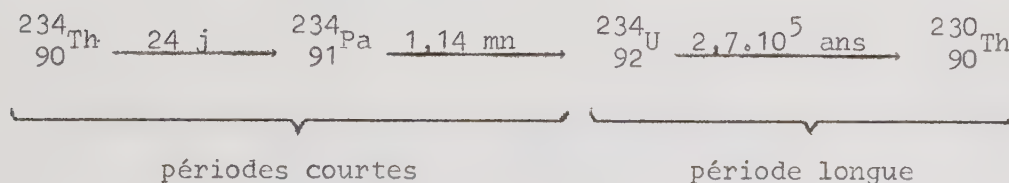
$$A_2 = N_1(0) \frac{\lambda_2 \lambda_1}{-\lambda_1} [-e^{-\lambda_2 t}] = N_1(0) \frac{\lambda_2 \lambda_1}{\lambda_1} e^{-\lambda_2 t}$$

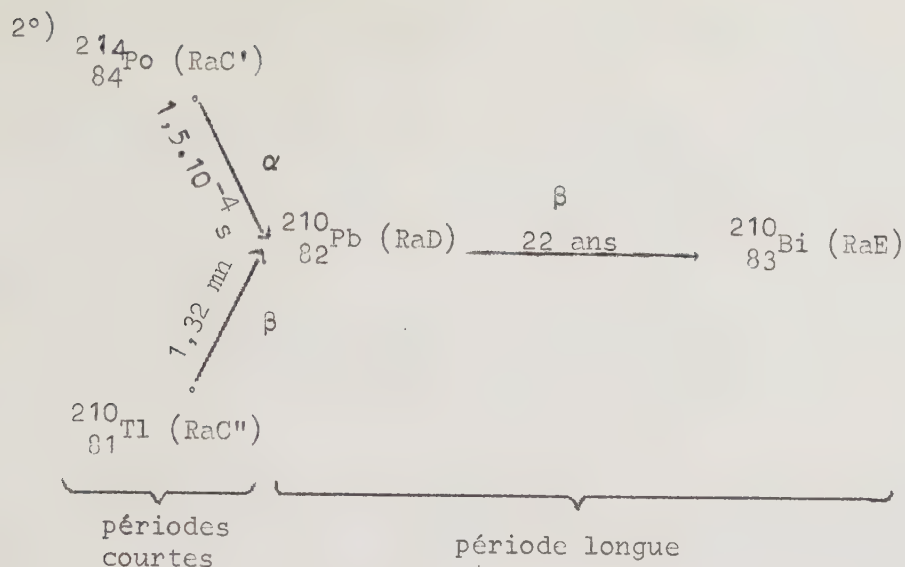
et finalement $A_2 \sim N_1(0) \lambda_2 e^{-\lambda_2 t}$

Dans ce cas, la collection initiale à période très courte devient rapidement une collection à période longue.

Ce cas se présente dans la famille de l'Uranium - Radium dans :

1°)





Deuxième cas : pour $T_1 > T_2$ ou $\lambda_1 < \lambda_2$

Nous avons un équilibre de régime.

Dans l'expression $K = \frac{A_2}{A_1} = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} [1 - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t}]$,

remplaçons λ par $\frac{\text{Ln}2}{T}$ et nous aurons :

$$K = \frac{\text{Ln}2/T_2}{\text{Ln}2/T_2 - \text{Ln}2/T_1} [1 - e^{-(\text{Ln}2/T_2 - \text{Ln}2/T_1)t}]$$

c'est-à-dire :

$$K = \frac{T_1}{T_1 - T_2} [1 - e^{-[(T_1 - T_2)/T_1] \cdot \lambda_2 t}]$$

dans cette dernière expression de K, le terme $\frac{T_1}{T_1 - T_2}$ est supérieur à 1.

D'autre part, l'exponentielle $\frac{1}{e^{\left[\frac{T_1 - T_2}{T_1}\right] \lambda_2 t}}$ s'annulera pratiquement au

bout d'un temps suffisamment long, de l'ordre de $t \gg \tau_2 \frac{T_1}{T_2 - T_1}$

$$K \rightarrow \frac{T_1}{T_1 - T_2} > 1 \quad ; K \text{ tend donc vers une valeur}$$

constante, c'est l'équilibre de régime ou encore l'équilibre dynamique.

Troisième cas : pour $T_1 \gg T_2$ ou $\lambda_1 \ll \lambda_2$

De la valeur de K dans le deuxième cas, on tire,

$$A_2 = A_1 \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \left[1 - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t} \right]$$

λ_1 étant négligeable devant λ_2 , les différences $\lambda_2 - \lambda_1$ sont très peu différentes de λ_2 et l'on peut écrire :

$$A_2 = A_1 \frac{\lambda_2}{\lambda_2} \left[1 - e^{-\lambda_2 t} \right]$$

$$\text{c'est-à-dire, } A_2 = A_1 [1 - e^{-\lambda_2 t}]$$

Pour un temps $t \gg T_2$, l'exponentielle du second membre tend vers zéro et on a :

$$A_2 = A_1 \rightarrow \frac{A_2}{A_1} = 1$$

C'est l'équilibre séculaire :

$$\frac{N_2}{N_1} = \frac{T_2}{T_1} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2}$$

Pour n éléments, nous aurions :

$$\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2 = \dots \dots \dots = \lambda_n N_n$$

Les radioéléments à courte vie, se trouvent très rapidement en équilibre avec la substance "mère". C'est le cas dans la famille de l'uranium.

En effet, si l'élément 1 a une période plus grande que l'élément 2, alors $\lambda_2 > \lambda_1$ et par conséquent :

$$e^{-\lambda_2 t} < e^{-\lambda_1 t}$$

$$\text{donc } N_2(t) \text{ tend vers } \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot N_1(0) \cdot e^{-\lambda_1 t}$$

Dans le cas de la filiation Radium-Radon où $T_1 = 1\,600$ ans et $T_2 = 3,82$ jours, l'équilibre est atteint au bout d'un temps égal à dix fois la période du radon, c'est-à-dire, 38 jours, car au bout de ce temps, l'exponentielle en λ_2 est pratiquement nulle.

$$e^{-\lambda_2 t} = e^{-\frac{\lambda_2}{T_2} 10 T_2} = 2^{-10}$$

Un autre cas important se trouve dans la tête de la famille de l'Uranium 238, c'est la filiation :



où le ^{230}Th (l'Ionium) avec une période de $8 \cdot 10^4$ années se trouve en équilibre avec l'Uranium au bout de $8 \cdot 10^5$ années. Si dès l'apparition des éléments dans la nature, la famille de l'Uranium s'était trouvée enfermée dans un système de "vase clos", c'est donc l'Ionium qui aurait déterminé le temps de mise en équilibre séculaire.

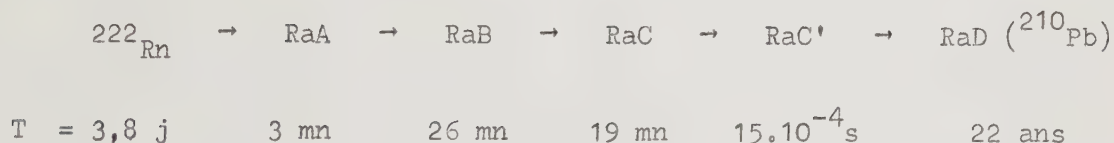
Il existe, toujours dans la famille de l'Uranium 238, des cas où l'élément 2 possède la période la plus longue. Dans ce cas, nous aurons :

$$T_2 > T_1 \quad ; \quad \lambda_1 > \lambda_2$$

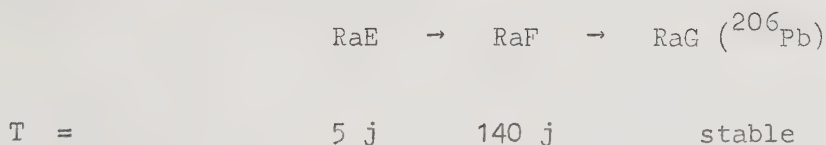
$$\text{et } N_2(t) \text{ tend vers } \frac{\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_2} N_1(0) e^{-\lambda_2 t}$$

ici c'est l'exponentielle $e^{-\lambda_1 t}$ qui a disparu.

Exemple :



ou encore



II - ETUDE THEORIQUE DE L'EQUILIBRE RADIOACTIF DANS LES MINERAUX DE L'URANIUM

1°) Les groupes de ROSHOLT

Les trois plus importantes familles radioactives naturelles sont formées de plusieurs radioisotopes, tous issus par transmutations successives d'un élément "mère".

L'uranium naturel est formé de trois radioisotopes dont les abondances sont :

^{238}U	99,28 %
^{235}U	0,711 %
^{234}U	0,006 %

Deux de ces radioéléments sont "mère" d'une famille, ^{238}U et ^{235}U .

La famille Uranium - Radium, issue de ^{238}U comprend dix-huit radio-isotopes de dix éléments différents :

Eléments	Nombre d'isotopes	Masse des isotopes
$^{92}\text{Uranium}$	2 isotopes	238 et 234
$^{90}\text{Thorium}$	2 "	234 et 230
$^{91}\text{Protactinium}$	1 "	234
$^{88}\text{Radium}$	1 "	226
$^{86}\text{Radon}$	2 "	222 et 218
$^{85}\text{Astate}$	1 "	218
$^{82}\text{Plomb}$	2 "	214 et 210
$^{84}\text{Polonium}$	3 "	218, 214 et 210
$^{83}\text{Bismuth}$	2 "	214 et 210
$^{81}\text{Thallium}$	2 "	210 et 206
10 éléments	18 isotopes	

Parmi les dix-huit radioisotopes, huit sont des émetteurs importants de rayonnement α et peuvent être identifiés par la détection et la spectrométrie de ce rayonnement. L'exploitation des spectrogrammes α permet ensuite de connaître l'importance relative de chacun de ces émetteurs.

Les énergies respectives de ces rayonnements α sont les suivantes :

Radioisotope		Energie du rayonnement α et son importance dans la désintégration de l'isotope			
l'Uranium I	$^{238}_{92}\text{U}$	4,195	MeV	77	%
		4,147		23	
l'Uranium II	$^{234}_{92}\text{U}$	4,768	MeV	72	%
		4,717		28	
L'Ionium	$^{230}_{90}\text{Th}$	4,682	MeV	76	%
		4,615		24	
Le Radium	$^{226}_{88}\text{Ra}$	4,777	MeV	94	%
		4,589		5,7	
Le Radon	$^{222}_{86}\text{Rn}$	5,486	MeV	~ 100	%
Le Radium A	$^{218}_{84}\text{Po}$	5,998	MeV	~ 100	%
Le Radium C'	$^{214}_{84}\text{Po}$	7,680	MeV	100	%
Le Radium F	$^{210}_{84}\text{Po}$	5,305	MeV	100	%

Trois autres isotopes émettent également des rayons α mais leur participation est négligeable, ce sont :

a) Le $^{218}_{86}\text{Rn}$ avec un alpha de 7,12 MeV, mais qui ne représente que $0,1 \times 3,1.10^{-2} \%$ de la désintégration du $^{218}_{84}\text{Po}$ (RaA),

b) Le $^{214}_{83}\text{Bi}$ (RaC) émet trois rayons α de :

5,333 MeV (17 %),

5,466 MeV (46 %),

5,517 MeV (37 %),

mais ne représente que 0,04 % de la désintégration du $^{214}_{83}\text{Bi}$,

c) Le $^{210}_{83}\text{Bi}$ (RaE) émet un rayon α de 5,02 MeV et représente $5.10^{-5} \%$ de la désintégration.

L'équilibre radioactif est un état-limite qui ne peut se réaliser que dans les conditions idéales d'un système de "vase clos" rarement obtenu dans la nature, chaque élément ayant un comportement imposé par sa nature chimique.

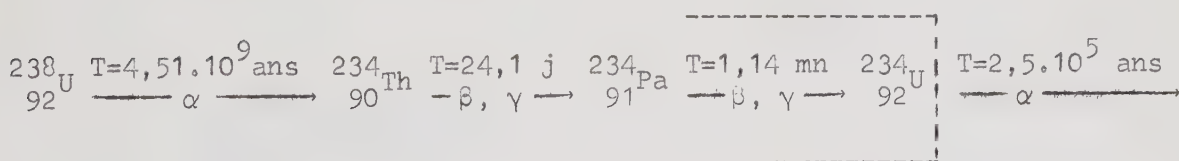
Dans le cas où les conditions idéales de "vase clos" se trouvent satisfaites, l'équilibre radioactif entre plusieurs radioéléments peut être défini avec précision par l'étude des équations fondamentales du problème à n corps de la théorie de la radioactivité et déterminé avec une très bonne précision par des mesures de spectrométrie α . Mais il n'en est pas toujours ainsi, et les éléments "fille" d'une collection initiale d'atomes d'uranium peuvent être entraînés soit avec les atomes de l'élément "mère" soit vers une destinée très différente et ceci en fonction de l'agressivité chimique des différentes parties des roches parcourues, à l'égard des différents radioéléments de la famille. L'exemple du radon est typique dans la famille Uranium - Radium. Cet élément est un gaz qui dans la classification de Mandeleieff se place dans les gaz rares. Il est donc permis

d'espérer qu'il ne risque pas beaucoup du côté chimique ; mais, par son comportement physique, il peut créer d'énormes déséquilibres dans la famille. En effet, le radon est soluble dans les eaux froides qu'il rencontre dans la lithosphère et sa période radioactive de 3,825 jours est suffisamment longue pour lui permettre de rester assez longtemps à l'état dissous dans ces eaux. Il s'ensuit que les descendants du radon peuvent être déposés très loin de la collection des atomes de l'élément "mère". Dans d'autres cas, le radon peut se fixer dans des roches poreuses et laisser dans celles-ci toute sa descendance tandis que la collection des atomes "mère" continue sa migration.

Dans ces conditions, il est clair que chaque élément de la famille Uranium - Radium, ou chaque groupe peut, à cause de sa géochimie propre et de ses propriétés radioactives, être à l'origine d'un déséquilibre. On devra donc parler des déséquilibres et non pas d'un déséquilibre.

Les éléments de la famille Uranium - Radium peuvent être classés en cinq groupes (ROSHOLT).

Le premier groupe
ou groupe de l'Uranium



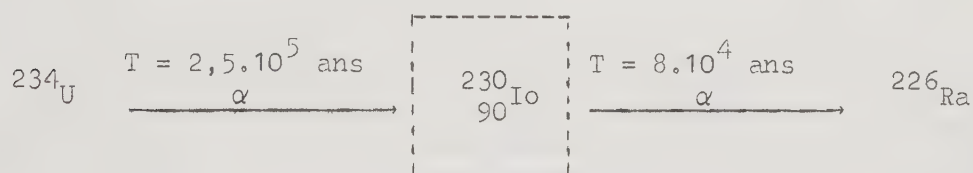
Dans ce groupe, l'Uranium 238 et l'Uranium 234 étant isotopes, ont vraisemblablement subi la même géochimie et rien n'autorise à penser qu'ils aient été séparés dans les phénomènes d'altération. La spectrométrie α nous donnera une indication quant à la teneur d'un minéral en ces

isotopes dans le cas de cristallisations supergènes des minéraux de l'Uranium (uranopilites et autunites, par exemple ; cf. CDR N 95, Carrefour, pp. 224-226, collection M. Renard).

En outre, ces deux isotopes de l'uranium, sont liés du point de vue descendance radioactive par deux éléments à vie courte, le Thorium 234 qui se met en équilibre avec l'Uranium 238 en 240 jours et le Protactinium 234 qui atteint l'équilibre immédiatement.

Le deuxième groupe

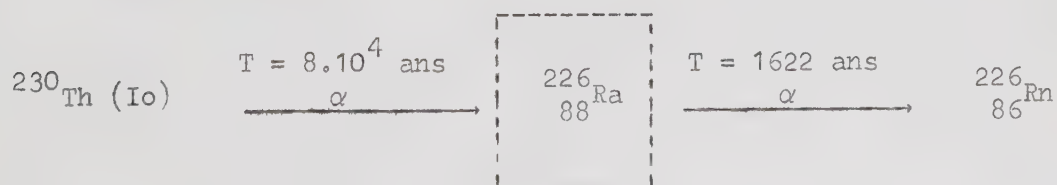
celui de l'Ionium $^{230}_{90}\text{Th}$



Cet isotope du Thorium possède une période très longue : 80 000 ans et ne se met en équilibre avec le premier groupe, et dans des conditions idéales, qu'au bout de 800 000 ans. Il peut donc, grâce à cette longue période radioactive avoir un comportement géochimique très différent de celui de l'uranium qui en valence VI, est très mobile dans la nature.

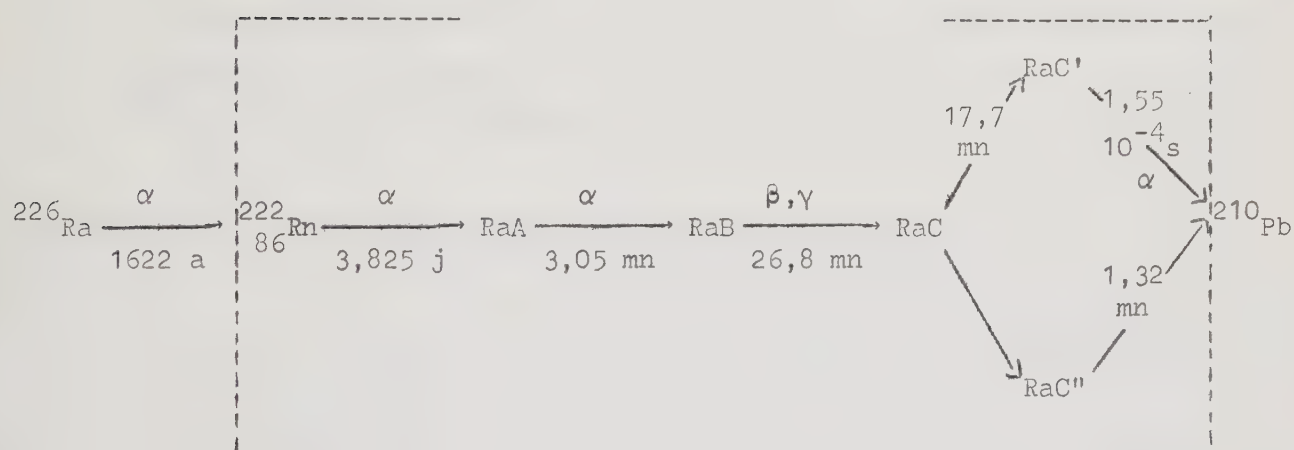
Le troisième groupe

celui du Radium



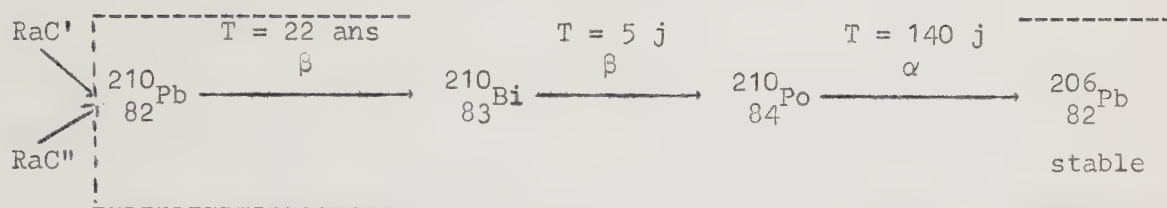
Cet élément fait partie du groupe des alcalino-terreux et peut donner des sulfates particulièrement insolubles. Dans des conditions géochimiques réductrices, il se mobilise alors que l'Uranium, dans ces mêmes conditions précipite. Le Radium peut donc, grâce à sa période radioactive de 1622 ans qui n'est pas négligeable, séparer la famille au cours de sa migration : cas des gîtes radifères (pyromorphite de Saint-Bresson - collection Jurain).

Le quatrième groupe
celui du Radon



Le radon, seul gaz de la famille Uranium - Radium est très souvent la cause de la séparation du dépôt actif des éléments de la tête de la famille. Les éléments $^{218}_{84}\text{Po}$ (RaA), $^{214}_{82}\text{Pb}$ (RaB), $^{214}_{83}\text{Bi}$ (RaC), $^{210}_{81}\text{Tl}$ (RaC'') et $^{214}_{84}\text{Po}$ (RaC') qui le suivent immédiatement, possèdent tous des périodes très courtes et se mettent aussitôt en équilibre avec le Radon dont la période réglera la décroissance.

Le cinquième groupe
celui du plomb



Dans ce groupe, la période la plus longue est celle du ^{210}Pb , l'accumulation de cet élément se fait par la destruction rapide du groupe précédent mais sa destruction est commandée par la période de 22 ans du ^{210}Pb qui assure la production de l'élément final stable, le plomb 206.

2°) L'équilibre radioactif dans la nature

Les minéraux et les roches contenant une certaine proportion d'uranium, ne montrent pas toujours un équilibre radioactif défini par l'étude théorique précédente.

Les raisons du déséquilibre sont nombreuses, et les principales en sont le temps et les caractères physico-chimiques des produits de filiation.

a) Le temps :

Nous avons montré qu'une collection de radioéléments en filiation, issus d'un élément "mère" ne pouvait atteindre l'équilibre séculaire qu'au bout d'un temps fonction des constantes radioactives de ses éléments. Pour la famille de l'uranium-radium, cet équilibre peut être atteint, à 1/1 000 près, et dans des conditions idéales de système

clos au bout de 800 000 ans environ car il est commandé par la période de l'Ionium ($^{230}_{90}\text{Th}$) qui est de 800 000 ans ($\frac{1}{2^{10}} = \frac{1}{1024} \simeq 10^{-3}$). Il est bien évident qu'un dépôt récent d'uranium (inférieur à $8 \cdot 10^5$ ans) ne pourra pas présenter d'équilibre radioactif.

A titre d'exemple, nous citerons les minéraux supergènes étudiés par G. Jurain :

- une pyromorphite de Bains-les-Bains dans les Vosges (1962) âgée de 120 000 ans et qui montre un net déficit de radium.

- une vanadinite de Saint-Bresson dans la Haute-Saône (1964), âgée également de 120 000 ans et qui présente le même déséquilibre par manque de radium.

- une uranopilite de Grézieux (collection Jurain) de formation actuelle et qui ne révèle en spectrométrie alpha que les radioisotopes ^{238}U et ^{234}U , c'est-à-dire, le radioélément "mère" et son isotope.

- une uranopilite de Vendée (collection Renard) : échantillon CDR n° 95, pp. 224-226) et qui ne contient également que les isotopes de l'uranium.

b) Les caractères physico-chimiques :

Les éléments de la famille uranium-radium (élément-mère et produits de filiation jusqu'à l'élément stable $^{206}_{82}\text{Pb}$) ont des numéros atomiques qui s'étalent de $Z = 92$ à $Z = 81$.

Ces éléments s'apparentent donc chimiquement à des groupes différents de la classification périodique et leur avenir chimique est de ce fait, dès leur naissance, lié, en fonction de leurs vies moyennes ($\tau=1,44$) à la vie de leur groupe d'appartenance.

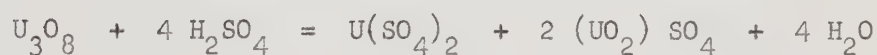
Les Uraniums : $^{238}_{92}\text{U}$ et $^{234}_{92}\text{U}$ du groupe VI A suivent la même chimie que

$^{24}_{Cr}$, $^{42}_{Mo}$, $^{74}_{W}$. Les éléments de ce groupe ont la propriété de donner des composés dits hexavalents. L'uranium est très remarquable par sa tendance à donner des cations oxygénés complexes $(UO)^{++}$ et surtout $(UO_2)^{++}$.

Son oxyde le plus stable U_3O_8 est un uranate U^{++++}



car il donne avec les acides un mélange de sels de U^{++++} et de U - VI



Les Thoriums $^{234}_{90}Th$ et $^{230}_{90}Th$ du groupe IV.A suivent la chimie de $^{22}_{Ti}$, $^{40}_{Zr}$, $^{72}_{Hf}$.

Le Protactinium $^{234}_{91}Pa$ du groupe V.A suit la chimie de $^{23}_V$, $^{41}_{Nb}$, $^{73}_{Ta}$.

Le Radium $^{226}_{88}Ra$ du groupe II.A suit la chimie des alcalino-terreux ^4Be , $^{12}_{Mg}$, $^{20}_{Ca}$, $^{38}_{Sr}$, $^{56}_{Ba}$.

Les Radons $^{222}_{86}Rn$ et $^{218}_{86}Rn$ du groupe 0 suivent la chimie des gaz rares insignifiante aux basses températures, avec ^2He , $^{10}_{Ne}$, $^{18}_{Ar}$, $^{36}_{Kr}$, $^{54}_{Xe}$.

L'Astate $^{218}_{85}\text{At}$ du groupe VII.B suit le groupe des halogènes ^9F , ^{17}Cl , ^{35}Br , ^{53}I . L'astate a une période très courte ($T = 2\text{s}$) et sa production dans la transmutation de $^{218}_{84}\text{Po}$ (Ra A) n'est que de $3,1 \cdot 10^{-2} \%$.

Les Poloniums $^{218}_{84}\text{Po}$, $^{214}_{84}\text{Po}$, $^{210}_{84}\text{Po}$ du groupe VI.B suivent ^{16}S , ^{34}Se , ^{52}Te . Seul le Polonium 210 (Ra F) a une période longue de 140 jours.

Les Bismuths $^{214}_{83}\text{Bi}$ et $^{210}_{83}\text{Bi}$ du groupe V.B suivent les ^{15}P , ^{33}As , ^{51}Sb .
Le Bismuth 210 (Ra E) a une période de cinq jours.

Les Plombs $^{214}_{82}\text{Pb}$, $^{210}_{82}\text{Pb}$, $^{206}_{82}\text{Pb}$ du groupe IV.B suivent les ^{14}Si , ^{32}Ge , ^{50}Sn .
Le Plomb 210 (Ra D) a une période de vingt-deux ans et peut subsister longtemps dans des collections de radio-isotopes créés à partir du Radon 226.

Les Thalliums $^{210}_{81}\text{Tl}$ et $^{206}_{81}\text{Tl}$ du groupe III.B suivent les ^{13}Al , ^{31}Ga , ^{49}In .
Ils ont tous deux des périodes très courtes et ne représentent que de faibles fractions des désintégrations des Bismuth 214 et 210

On sait depuis longtemps que l'uranium est rapidement lessivé

des minerais (Phair et Levine, 1953).

Le schéma de ce processus de lessivage, qui a été donné par divers auteurs (dont Chervet et Coulomb, 1958) serait le suivant :

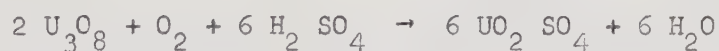
La pyrite donne :



ou encore,



L'acide sulfurique ainsi formé, transforme les oxydes de l'uranium suivant :



Dans cet état de sulfate soluble, l'uranium peut être mis en circulation par les eaux et précipiter sous forme d'oxydes dès la rencontre d'un milieu réducteur qui peut être, par exemple, un sulfate ferreux formé dans des conditions analogues à celles décrites précédemment :



S'il est reconnu qu'au cours du lessivage, l'uranium est enlevé alors que le radium reste sur place, le phénomène de déséquilibre ne peut être attribué, comme on l'admet généralement qu'à la différence de solubilité des sulfates dans les eaux de circulation.

La solubilité de $\text{UO}_2 \text{SO}_4$ est de 0,2 gramme par centimètre-cube d'eau, celle du Ra SO_4 est de $1,4 \cdot 10^{-6}$ grammes par centimètre-cube d'eau. Evidemment, ces chiffres sont très différents l'un de l'autre, mais en effectuant le calcul, on constate que :

$$\text{UO}_2 \text{SO}_4, 3 \text{H}_2\text{O} = 420$$

$$\text{Ra SO}_4 = 322$$

pour transporter 1 g d'Uranium, il faut donc,

$$\left[\frac{238 \times 0,2}{420} \right]^{-1} = 8,823 \text{ cm}^3 \text{ d'eau, dans les mêmes con-}$$

ditions, cette quantité d'eau transporte en solution

$$1,4 \cdot 10^{-6} \times 8,823 = 12,352 \cdot 10^{-6} \text{ g de Ra SO}_4$$

$$\text{c'est-à-dire, } \frac{226 \times 12,352}{322} = 8,6694 \cdot 10^{-6} \text{ g de Ra}$$

$$= 86,694 \cdot 10^{-7} \text{ g de Ra.}$$

Mais l'équilibre U - Ra a lieu pour les quantités :

$$\text{U} = 1 \rightarrow \text{Ra} = 3,37 \cdot 10^{-7}, \text{ nous disposons}$$

donc $\simeq \frac{8670}{337}$ soit 25 fois cette quantité de Ra.

Or, de nombreuses observations semblent prouver que le radium reste sur place ; il est donc probable, qu'il s'agisse pour ce qui est de l'immobilisation du radium, d'un autre phénomène physico-chimique qu'il conviendrait d'étudier.

CHAPITRE II

LES SEMI - CONDUCTEURS

I - LES SEMI-CONDUCTEURS

1°) Généralités

Depuis quelques années, on appelle semi-conducteurs, des corps qui autrefois, étaient appelés des mauvais conducteurs. Dès les débuts de l'Electronique, les corps ont été classés en trois catégories suivant leur conductibilité électrique.

a) Les bons conducteurs ou métaux dont les résistivités ρ sont de l'ordre de 10^{-7} à 10^{-8} ohms.m⁻¹ ; $1,6 \cdot 10^{-8}$ pour l'argent, $9,5 \cdot 10^{-7}$ pour le mercure.

Pour ces bons conducteurs, la résistivité croît avec la température suivant la loi $\rho_{\theta} = \rho_0(1 + \alpha t)$.

b) Les mauvais conducteurs pour lesquels les résistivités sont de l'ordre de 10^{-1} à 10^4 ohm.m⁻¹.

Pour cette catégorie, la résistivité décroît généralement quand la température augmente : ex. - le carbone ; le sulfure d'argent (Faraday, 1833).

c) Les non-conducteurs ou isolants pour lesquels les résistivités sont au moins égales à 10^{10} ohm.m⁻¹.

Ici aussi, la résistivité décroît quand la température augmente,

ce qui est un très grave inconvénient.

L'étude de la physique du solide est une science relativement récente. Actuellement, grâce à la mécanique ondulatoire, les propriétés des semi-conducteurs sont très soigneusement étudiées et prévues.

L'énorme sensibilité des propriétés électriques des semi-conducteurs en fonction des traces d'impuretés qu'ils contiennent, ont rendu les études expérimentales très difficiles ; l'introduction d'un atome d'antimoine pour 10^8 atomes de germanium suffit pour faire passer la résistivité de ce semi-conducteur de 47 ohm.m^{-1} à $38.10^{-3} \text{ ohm.m}^{-1}$.

L'emploi empirique des semi-conducteurs remonte déjà à plus d'un demi-siècle ; depuis 1900, on savait utiliser la galène, la pyrite et la zincite pour la détection des ondes électromagnétiques - les redresseurs secs au sélénium sont utilisés pour le redressement industriel des courants alternatifs, depuis 1920 et les redresseurs à l'oxyde de cuivre sont utilisés pour le même usage depuis l'année 1926 - mais à partir de 1931, de sérieuses recherches théoriques sur l'état solide sont entreprises tant en Europe qu'aux Etats-Unis par L. Brillouin, A.H. Wilson, J.C. Slater, F. Seitz et W. Schottky. Dès les premières années de la deuxième guerre mondiale, des physiciens U.S.A. étudient expérimentalement les redresseurs au silicium et au germanium, ces recherches furent entreprises pour la réalisation de diodes au germanium et au silicium possédant une grande résistance aux surtensions, nécessaires au radar. C'est dans le cadre de ces études que les physiciens J. Bardeen et W.H. Brattain des Laboratoires de la Bell Telephon, découvraient en 1948, le transistor à pointe (Brevet du 17 juin 1948). Dès cette importante découverte, les travaux sur les semi-conducteurs ont été menés avec une rapidité étonnante et en 1949, W. Shockley publiait une étude théorique où il montrait qu'une jonction créée par

l'existence de deux types différents d'impuretés dans un cristal de germanium possédait des propriétés électriques dissymétriques qui permettaient son utilisation comme diode de redressement. Par cette étude, W. Shockley prévoyait en plus qu'une structure comportant de telles jonctions rapprochées était capable d'amplifier des signaux électriques ; c'était la route ouverte à la réalisation du transistor à jonction (1951) qui devait en peu de temps révolutionner l'électronique et permettre la miniaturisation des appareillages.

2°) Comportement électronique du germanium et du silicium

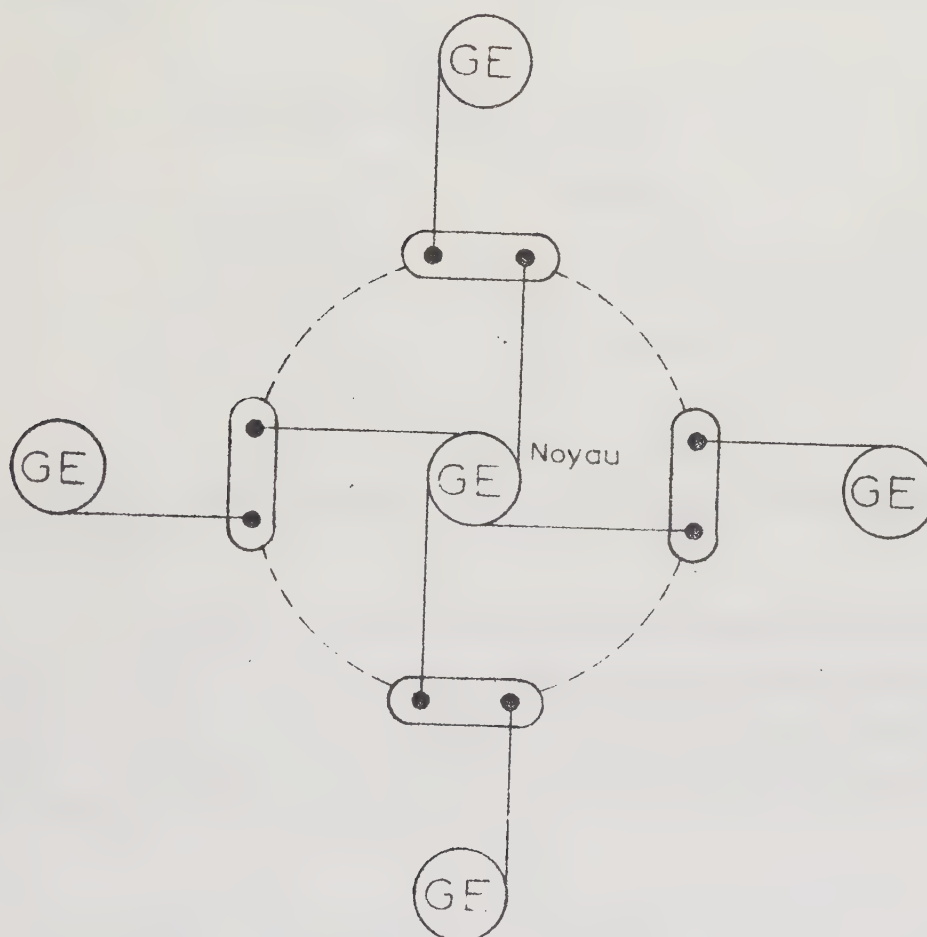
Le germanium et le silicium sont les matériaux semi-conducteurs les plus utilisés, tous deux possèdent une structure cristalline cubique dans laquelle la couche électronique périphérique de chaque atome possède huit électrons répartis en quatre liaisons de covalence.

Dans cette configuration, les électrons de valence sont très solidement liés à l'édifice cristallin et ne peuvent donc participer à la création d'un courant électrique par manque de mobilité. Cependant, la rigueur de cet édifice peut être perturbée par certaines causes extérieures qui en brisant les liaisons de covalence libèrent les électrons. Ces causes principales peuvent être : l'agitation thermique (à 15°C, l'agitation thermique moyenne des molécules d'un gaz n'est que de 0,037 eV), l'absorption par l'atome d'un rayonnement électromagnétique ou l'absorption d'une particule chargée (rayonnement α , par exemple). Un électron libéré de la liaison covalentielle par un de ces processus d'ionisation laissera en son emplacement, un défaut de charge négative et ce manque de négativité se traduira par la naissance d'un trou positif.

Ces deux "éléments nouveaux" dans la structure cristalline du semi-conducteur - l'électron libre et le trou - sont appelés por-

teurs de charge et peuvent participer au courant électrique. Pour tout cristal semi-conducteur soumis à l'un quelconque des processus cités, à une température donnée par exemple, il existe un état d'équilibre statistique.

Liaisons covalentes $\rightleftharpoons$ électrons libres + trous :

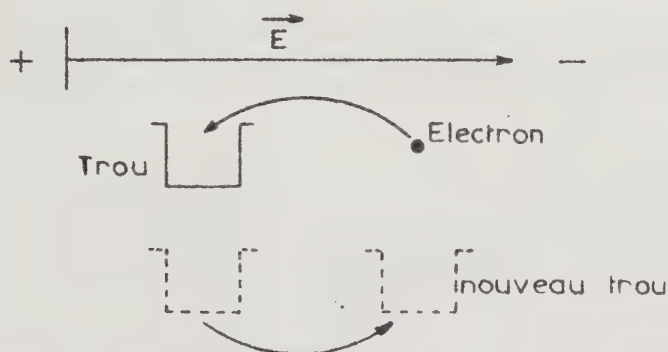


L'étude du mécanisme de la conductibilité électrique du milieu semi-conducteur est fondamentale. Pour ce faire, tenons nous au cas d'un milieu cristallisé sans défauts ; ces défauts peuvent être :

Les défauts chimiques : présence d'impuretés,

Les défauts physiques : lacunes, atome interstitiel, dislocations ou autres défauts de réseau.

Sous l'action d'un champ électrique $\vec{E}$, les électrons libres nés de la rupture d'une liaison de covalence sont entraînés simultanément dans un sens inverse de celui de $\vec{E}$. Au cours de leur déplacement, les électrons comblent les trous positifs créés dans les liaisons par leur départ, il s'ensuit qu'ils ne peuvent combler que les trous situés en amont dans le sens du champ.



On peut donc dire que la distribution des trous se déplace dans le sens du champ.

Les électrons et les trous positifs possédant des vitesses de déplacement différentes, on a défini la mobilité de chacun des porteurs ; cette mobilité, comme dans l'étude des électrolytes, est le rapport de la vitesse v de déplacement du porteur au champ électrique $\vec{E}$ qui produit le déplacement. Elle s'exprime par :

$$\mu = \frac{v}{E}, \text{ et son équation aux dimensions, sera :}$$

$$\mu = \frac{(m \cdot s^{-1})}{V \cdot m^{-1}} = (m^2 \cdot V^{-1} \cdot s^{-1})$$

et on notera la mobilité des porteurs négatifs μ_n et celle des porteurs positifs μ_p .

Dans les semi-conducteurs, les différents porteurs de charges

ne sont pas toujours au même nombre. L'emploi du phénomène de Hall a permis de démontrer qu'il existe des semi-conducteurs où les porteurs de charges négatives sont majoritaires, ces semi-conducteurs sont du type n et ceux dont les porteurs de charges positives sont majoritaires sont appelés de type p.

Si n_n est la concentration des porteurs de charges négatives,

et n_p celle des charges positives, on aura :

semi-conducteur	}	type n	pour $n_n > n_p$
extrinsèque		type p	pour $n_p > n_n$

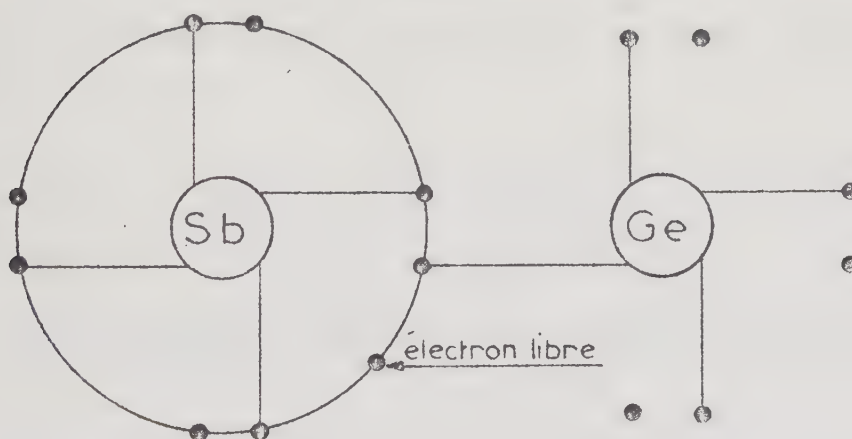
semi-conducteur	}	
intrinsèque		pour $n_n = n_p = n_i$

Les semi-conducteurs pratiquement utilisés sont très rarement purs chimiquement et il a fallu arriver à des méthodes de purification et de cristallisation très poussées pour vérifier les résultats théoriques. On utilise donc beaucoup plus les semi-conducteurs extrinsèques, les semi-conducteurs dopés obtenus en ajoutant à des matériaux de base, germanium ou silicium, des impuretés judicieusement choisies, en quantités bien déterminées.

Les impuretés utilisées pour doper les matériaux de base se classent en éléments donneurs et en éléments accepteurs.

Les éléments donneurs sont ceux qui peuvent, d'après la configuration électronique de la dernière couche de leurs atomes, donner un

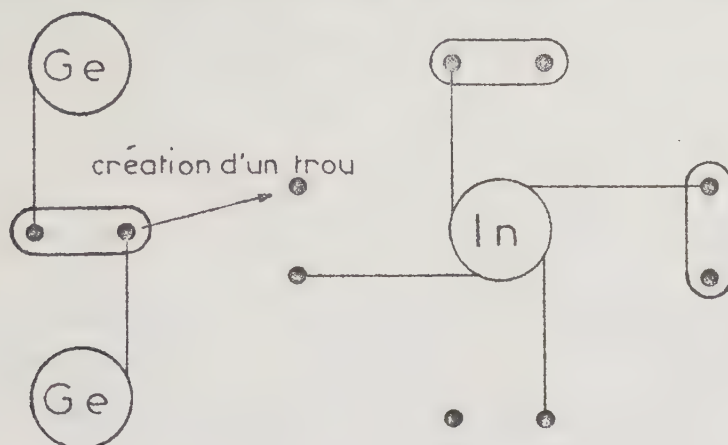
électron, ce sont des éléments qui se classent dans la cinquième colonne de la classification de Mandeleieff et possèdent cinq atomes sur leur couche périphérique. Si nous ajoutons à un cristal de germanium, une certaine quantité d'antimoine (pentavalent), nous formons un cristal impur. L'atome de germanium a un diamètre de $2,4 \text{ \AA}$ et celui de l'antimoine est de $2,8 \text{ \AA}$. Dans le réseau cristallin, l'atome pentavalent occupe la place d'un atome de germanium ; quatre de ses électrons périphériques participeront aux liaisons de covalence avec ceux des atomes de germanium voisins, mais le cinquième sera un électron libre ou du moins, les forces de liaison qui l'unissent à l'atome seront si faibles qu'il se comportera pratiquement comme un électron libre. Cet électron jouera un grand rôle dans le cristal semi-conducteur puisqu'il participera à la conduction de l'électricité, l'atome d'antimoine devenant un ion Sb^+ .



En dopant le germanium par un élément pentavalent, on vient de créer un semi-conducteur dont la conductibilité se fait par électron, il est du type n.

Si, au lieu de doper le germanium avec Sb, on emploie un élément trivalent, l'indium, par exemple, et toujours en quantité infime, on obtiendra un germanium du type p à conductibilité par trous. Chacun des atomes d'indium occupera la place d'un atome de germanium dans le réseau cristallin, mais ne disposant que de trois électrons sur sa couche périphérique,

une liaison covalente avec son voisin tétravalent restera disponible ; il y a création d'un trou positif par manque d'une charge négative.



a) Conductivité

Si p et n sont respectivement, les concentrations des trous et des électrons libres par unité de volume et ρ la résistivité du semi-conducteur, on aura :

$$\sigma = \frac{1}{\rho} = (n \mu_n + p \mu_p) e$$

Pour le semi-conducteur du type intrinsèque, la conductivité est :

$$\sigma_i = en_i (\mu_n + \mu_p) \quad \text{avec } n = p = n_i \quad \text{ou} \quad np = n_i^2$$

b) Considérations théoriques

Pour l'explication des phénomènes de conduction et des propriétés électriques des semi-conducteurs en général, et des détecteurs de rayonnement en particulier, les calculs se font rigoureusement par la mécanique ondulatoire, à l'aide de l'équation de Schrödinger. Un exposé sommaire nous permettra de donner une idée intuitive des phénomènes et aidera à l'interprétation des résultats théoriques.

Equation de Schrödinger

Un oscillateur-origine produit une oscillation ψ qui se propage dans un milieu isotrope, à la vitesse de phase v . En représentant la propagation de ψ dans la direction O_x , on peut écrire :

$$\psi = a \cos \omega t$$

avec : la pulsation $\omega = 2 \pi \nu$ ou vitesse angulaire en radians. s^{-1}
 la fréquence $\nu = \frac{1}{T}$ $T = \text{période en } s^{-1}$
 la longueur d'onde $\lambda = v T$

L'expression devient :

$$\psi = a \cos 2 \pi \nu t$$

$$= a \cos 2 \pi \frac{t}{T}$$

L'onde arrivera en x à l'instant $\theta = \frac{x}{v}$

Le mouvement en x reproduit alors, à l'amplitude près celui de l'origine à l'instant $t - \theta$ et nous avons

$$\psi = a \cos 2 \pi \frac{t - \theta}{T}$$

$$= a \cos 2 \pi \left[\frac{t}{T} - \frac{x}{vT} \right]$$

En introduisant $\lambda = cT$:

$$\psi = a \cos 2 \pi \left[\frac{t}{T} - \frac{x}{\lambda} \right]$$

ψ est une fonction de fonction de la forme :

$$\psi = f(u) \quad \text{avec} \quad u = \varphi(x) = 2 \pi \left[\frac{t}{T} - \frac{x}{\lambda} \right]$$

En dérivant une première fois, par rapport à x :

$$\psi'_x = \frac{\delta \psi}{\delta x} = f'(u) \cdot u'$$

$$a) \quad f'(u) = -a \sin 2 \pi \left[\frac{t}{T} - \frac{x}{\lambda} \right]$$

$$b) \quad u' = \frac{d}{dx} \left[-\frac{2 \pi}{\lambda} x \right] = -\frac{2 \pi}{\lambda}$$

$$\text{donc} \quad \frac{\delta \psi}{\delta x} = \left[-a \sin 2 \pi \left[\frac{t}{T} - \frac{x}{\lambda} \right] \right] \cdot \left[-\frac{2 \pi}{\lambda} \right]$$

$$\text{ou} \quad \psi'_x = a \frac{2 \pi}{\lambda} \sin 2 \pi \left[\frac{t}{T} - \frac{x}{\lambda} \right]$$

La dérivée seconde, par rapport à x , sera :

$$\psi''_x = \frac{\delta^2 \psi}{\delta x^2} = g' u \cdot u' \quad \text{avec } u = 2\pi \left[\frac{t}{T} - \frac{x}{\lambda} \right]$$

$$c) \quad g' u = a \frac{2\pi}{\lambda} \cos 2\pi \left[\frac{t}{T} - \frac{x}{\lambda} \right]$$

$$d) \quad u' = -\frac{2\pi}{\lambda} \quad (\text{comme plus haut})$$

et finalement :

$$\psi''_x = \frac{\delta^2 \psi}{\delta x^2} = - \left[\frac{2\pi}{\lambda} \right]^2 \underbrace{a \cos 2\pi \left[\frac{t}{T} - \frac{x}{\lambda} \right]}_{\psi}$$

$$\text{c'est-à-dire :} \quad \psi''_x = - \left[\frac{2\pi}{\lambda} \right]^2 \cdot \psi$$

$$\text{ou encore} \quad \frac{\delta^2 \psi}{\delta x^2} + \left[\frac{2\pi}{\lambda} \right]^2 \psi = 0$$

Cette équation aux dérivées partielles, est vérifiée en tout point par la vibration ψ , c'est l'équation d'onde.

En opérant de la même manière, pour les trois directions de l'espace, nous obtiendrons l'équation de propagation pour une direction quelconque, soit :

$$\frac{\delta^2 \psi}{\delta x^2} + \frac{\delta^2 \psi}{\delta y^2} + \frac{\delta^2 \psi}{\delta z^2} + \left[\frac{2\pi}{\lambda} \right]^2 \psi = 0$$

$$\Delta \psi + \left[\frac{2 \pi}{\lambda} \right]^2 \psi = 0$$

Dans la théorie de Broglie, $\lambda = \frac{h}{mv}$

$$h = 6,624 \cdot 10^{-27} \text{ erg.s}^{-1}$$

Avec cette valeur de λ , l'équation devient :

$$\Delta \psi + \left[\frac{2 \pi}{\frac{h}{mv}} \right]^2 \psi = 0$$

$$\Delta \psi + \frac{4 \pi^2 m^2 v^2}{h^2} \psi = 0$$

Or, l'énergie totale d'une particule est la somme de son énergie potentielle V et de son énergie cinétique $\frac{1}{2} m v^2$

$$E = V + \frac{1}{2} m v^2 \rightarrow m v^2 = 2 (E - V)$$

et $m^2 v^2 = 2 m (E - V)$

L'équation devient :

$$\Delta \psi + \frac{8 \pi^2 m}{h^2} (E - V) \psi = 0$$

Et en posant :

$$\hbar = \frac{h}{2\pi} \rightarrow h = 2\pi\hbar$$

$$\Delta \psi = \frac{2m}{\hbar^2} (E - V) \psi = 0$$

Si la particule est un électron soumis à un potentiel fonction des coordonnées d'espace, $V(x, y, z)$, l'équation s'écrit :

$$\Delta \psi(x, y, z) + \frac{2m}{\hbar^2} [E - V(x, y, z)] \psi(x, y, z) = 0$$

II - LES ELECTRONS LIBRES - LE Puits DE POTENTIEL

Dans un métal, les électrons libres se déplacent dans tout le volume du solide, mais ils ne peuvent en sortir.

En effet, si l'un d'eux sortait, le métal qui était électriquement neutre, se chargerait aussitôt positivement et reprendrait possession de la particule négative. Tout se passe donc comme si les électrons se déplaçaient dans un puits de potentiel.

Si ce puits de potentiel est infiniment profond, les électrons n'ont aucune chance de sortir du métal.

On peut imaginer, un cristal très simplifié : un réseau linéaire formant un cristal à une dimension. Supposons que N atomes soient étalés le long de l'axe des x . S'ils sont distants les uns des autres de a , ils

se répartiront entre l'abscisse $-\frac{Na}{2}$ et l'abscisse $+\frac{Na}{2}$

Chaque atome conserve près de lui un certain nombre d'électrons fortement liés, mais laisse "libres" quelques atomes faiblement liés. Ceux-ci pourront se répartir dans tout l'ensemble du cristal.

Dans le puits de potentiel de largeur Na et infiniment profond, l'électron n'aura aucune chance de sortir, la fonction φ qui est la probabilité de présence est donc nulle à l'extérieur de notre cristal linéaire.

$$\varphi \left[-\frac{Na}{2} \right] = 0 \quad \text{et} \quad \varphi \left[+\frac{Na}{2} \right] = 0$$



Comme, d'autre part, l'énergie potentielle est nulle à l'intérieur du puits, l'équation de Schrödinger se réduit ici à :

$$\frac{d^2 \varphi}{dx^2} + \frac{2m}{h^2} E \cdot \varphi = 0$$

c'est-à-dire, à une équation différentielle du deuxième ordre de la forme :

$$\frac{d^2 \varphi}{dx^2} + \alpha^2 \varphi = 0 \quad \text{dont les solutions sont :}$$

$$\varphi_1 = \cos \alpha x \quad \text{et} \quad \varphi_2 = \sin \alpha x$$

En effet,

$$\frac{d^2}{dx^2} \cos \alpha x = -\alpha^2 \cos \alpha x$$

et

$$\frac{d^2}{dx^2} \sin \alpha x = -\alpha^2 \sin \alpha x$$

Ces solutions sont linéairement indépendantes car $C_1 \cos \alpha x + C_2 \sin \alpha x$ n'est identique à zéro que si $C_1 = C_2 = 0$.

La solution générale est donc :

$$\varphi = A \cos \alpha x + B \sin \alpha x$$

La solution s'annulant aux extrémités du puits, nous pouvons choisir entre :

$$1^\circ \quad \varphi = \varphi_0 \sin \underbrace{\left[\frac{2m E}{h^2} \right]^{1/2}}_{\alpha} x$$

$$\text{avec} \quad \left[\frac{2m E}{h^2} \right]^{1/2} \frac{Na}{2} = n \pi \quad \left| \quad \begin{array}{l} n = \text{entier} \\ x = \frac{Na}{2} \\ \text{car } \sin n \pi = 0 \end{array} \right.$$

d'où l'on tire la valeur de E :

$$\frac{2m E}{\hbar^2} = \frac{N^2 a^2}{4} = n^2 \pi^2$$

$$E_{(1)} = 4 n^2 \frac{\pi^2 \hbar^2}{2m N^2 a^2}$$

ou bien

2°)

$$\varphi = \varphi_0 \cos \underbrace{\left[\frac{2m E}{\hbar^2} \right]}_{\alpha}^{\frac{1}{2}} x$$

avec

$$\left[\frac{2m E}{\hbar^2} \right]^{\frac{1}{2}} \frac{Na}{2} = (2n + 1) \frac{\pi}{2}$$

$$\left| \begin{array}{l} n = \text{entier} \\ x = \frac{Na}{2} \\ \cos (2n + 1) \frac{\pi}{2} = 0 \end{array} \right.$$

D'où l'on peut tirer la valeur de E :

$$E_{(2)} = (2n + 1)^2 \frac{\pi^2 \hbar^2}{2m N^2 a^2}$$

Ces valeurs de l'énergie sont les seules possibles, nous les appellerons les valeurs permises de l'électron.

$$\text{soit } 4 n^2 \text{ et } (2n + 1)^2 = p^2$$

p est un nombre entier ; s'il est pair, il faut adopter la solution im-

paire en sinus. Si p est impair, il faut adopter la solution paire en cosinus.

Finalement :

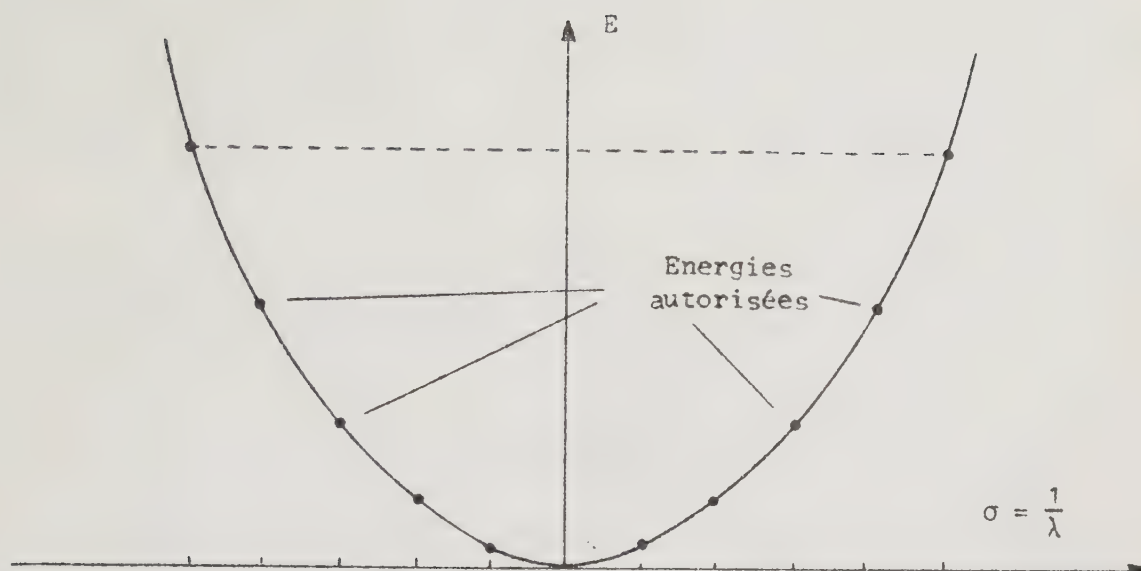
$$E_p = p^2 \frac{\pi^2 \hbar^2}{2m N^2 a^2}$$

L'onde φ de fréquence ν , a une longueur d'onde $\lambda = \frac{v}{\nu}$. Appelons σ le nombre d'onde, c'est-à-dire, le nombre de cycles par unité de longueur, le long du parcours ; alors,

$$\sigma = \frac{1}{\lambda} = \frac{mv}{h} = \frac{\sqrt{2m E}}{h}$$

$$(E = \frac{mv^2}{2} \rightarrow 2m E = m^2 v^2)$$

En traçant la courbe représentant les énergies autorisées de l'électron, en fonction de σ , on obtient une parabole (σ, E) .



Le calcul du nombre d'états autorisés à l'électron pour des vitesses comprises entre v et dv est immédiat.

En effet,

$$E = \frac{1}{2} m v^2 = p^2 \frac{\pi^2 \hbar^2}{2m N^2 a^2}$$

On en tire,

$$v = p \frac{\pi \hbar}{m Na} \rightarrow p = v \frac{m Na}{\pi \hbar}$$

Puis,

$$\frac{dp}{dv} = \frac{m}{\pi \hbar} \cdot Na$$

$$\text{Et finalement, avec } h = 2 \pi \hbar : \frac{dp}{dv} = 2 \frac{m}{h} Na$$

Chaque point de la parabole représente un état d'énergie autorisé. Le principe de Pauli limite, en physique quantique, le nombre d'électrons susceptibles de se trouver dans un état d'énergie donnée. Chaque point ne pourra contenir que deux électrons, de spins opposés, soit au total quatre électrons par état d'énergie : deux par état sur la branche gauche de la parabole (vitesse - v) et deux sur la branche droite (vitesse + v).

Si tous les états sont pleins, l'énergie du niveau le plus élevé, dite Energie de Fermi, qui, en supposant un seul électron libre pour chacun des N atomes, aura pour valeur :

$$E_F = p^2 \frac{\pi^2 \hbar^2}{2m N^2 a^2}$$

c'est-à-dire, pour les $\frac{N}{4}$ valeurs de l'énergie,

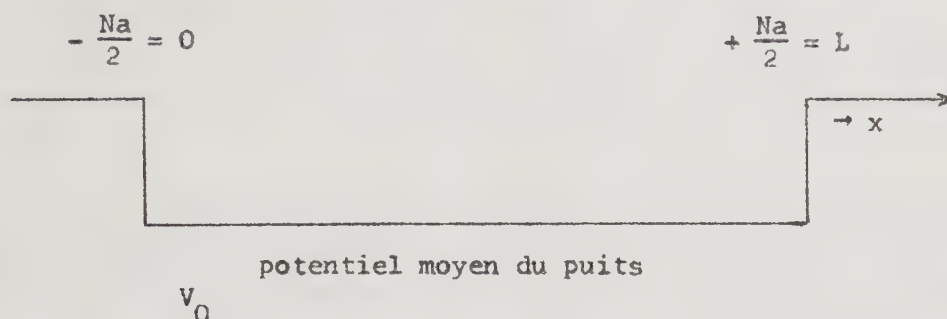
$$E_F = \left[\frac{N}{4} \right]^2 \frac{\pi^2 \hbar^2}{2m N^2 a^2} = \frac{\pi^2 \hbar^2}{32 m a^2}$$

III - THEORIE DES BANDES

Dans les pages précédentes, nous avons fait appel à un modèle ultra-simplifié de cristal, il nous a néanmoins permis de montrer que dans un cristal fini, l'électron libre ne pouvait posséder que des énergies de valeurs quantifiées.

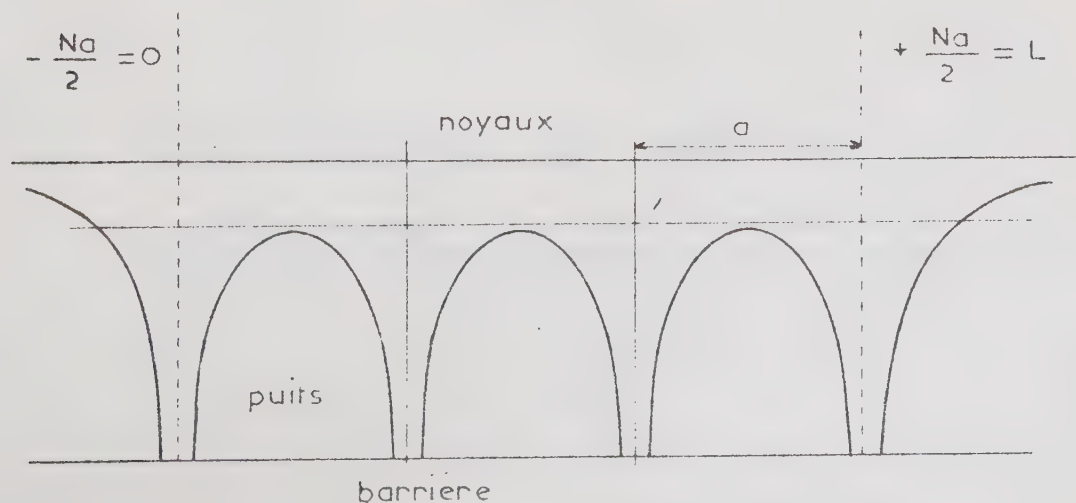
$$E_p = p^2 \frac{\pi^2 \hbar^2}{2m N^2 a^2} = \frac{n^2 \hbar^2}{8m L^2} \quad (p = n, Na = L, \hbar = \frac{h}{2\pi})$$

Dans ce modèle, nous n'avons pas tenu compte de la charge des noyaux des différents N atomes, de sorte que le puits de potentiel dans lequel nous avons considéré l'électron était de la forme :



En adoptant ce modèle, nous avons admis que les différentes forces d'attraction auxquelles sont soumis les électrons (de charge $-e$) de la part des ions positifs (de charge $+q$) et qui dérivent d'un potentiel négatif $V = -4 \frac{eq}{\epsilon d}$, pouvaient être remplacées par une valeur moyenne V_0 constante dans le cristal.

Si maintenant, nous tenons compte de la charge positive des noyaux que nous plaçons aux noeuds du réseau cristallin, la représentation graphique du potentiel nous montre que celui-ci est formé d'une suite de paraboles, c'est un potentiel périodique $V(x) = V(x+Na)$ de périodicité a . Il passe par les minima correspondant au groupe près de la charge $+q$ des noyaux positifs.



Ce potentiel est donc formé d'une suite du puits et de barrières de potentiel. Nous voyons immédiatement que dans ces conditions et pour certaines valeurs des ondes de de Broglie, c'est-à-dire, pour certaines valeurs de l'énergie cinétique de l'électron, ces ondes seront totalement réfléchies. Les ondes de de Broglie n'étant autre chose que les probabilités de présence, il est clair que pour certaines valeurs définies de leur énergie, les électrons ne pourront pas se propager dans le réseau mais rebondiront en arrière.

Les valeurs pour lesquelles la propagation est impossible, ne sont pas des valeurs précises, mais des domaines d'énergie très étroits, qui interdisent la propagation. Un électron dont l'énergie se trouve dans les valeurs comprises dans celles de ces domaines interdits ou bandes interdites ne circulera donc pas dans le réseau et par suite, ne contribuera pas à la conductibilité électrique du cristal.

L'équation de Schrödinger s'écrira ici :

$$\frac{\hbar^2}{8m \pi^2} \Delta \varphi (\vec{r}) + [E - V(\vec{r})] \varphi (\vec{r}) = 0$$

$\vec{r}$ étant le vecteur joignant l'électron en mouvement à l'origine des coordonnées ; $\varphi (\vec{r})$ l'onde de de Broglie accompagnant la particule.

La solution de cette équation a été donnée par Bloch, elle est de la forme :

$$\varphi (\vec{r}) = e^{i\vec{k}\vec{r}} \cdot u_{\vec{k}}(\vec{r})$$

$$\vec{k} \text{ étant ici le vecteur d'onde } = \frac{2\pi}{\lambda} = 2\pi\sigma$$

Au cours de sa propagation dans le réseau cristallin où le poten-

tiel dépend des coordonnées d'espace de la particule, l'onde $\varphi(\vec{r})$ sera sous l'influence des noyaux disposés aux noeuds du cristal et modulée en phase comme en amplitude. L'amplitude u possédera la périodicité du réseau.

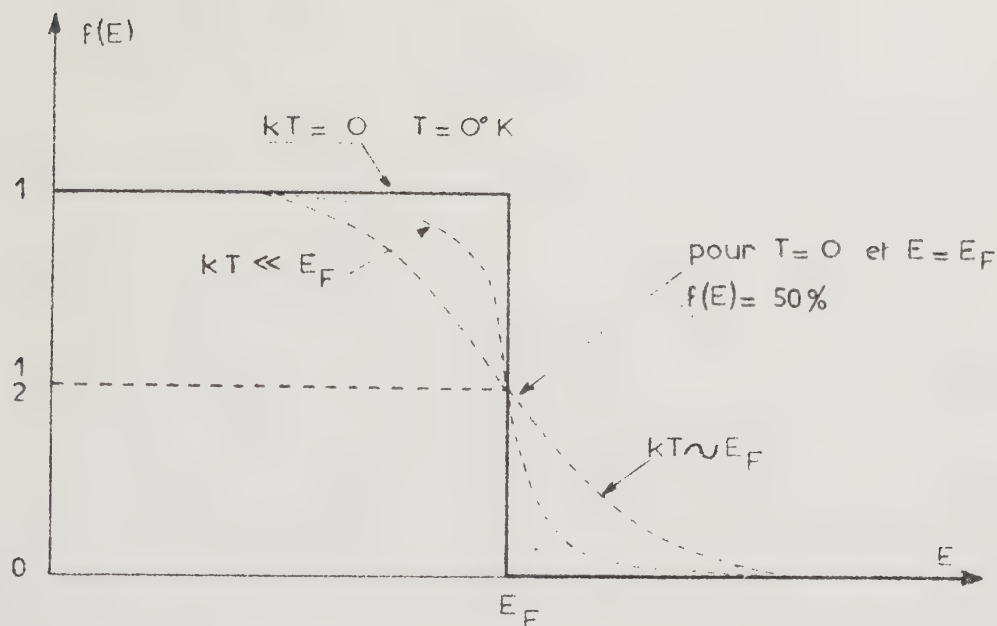
Pour un réseau linéaire dont la distance entre les atomes est a , l'énergie potentielle $V(\vec{r})$ aura une période spatiale égale à a et l'onde de de Broglie associée à l'électron se comportera comme le rayonnement électromagnétique X tombant normalement sur un cristal dont la distance des plans réticulaires est a ; la réflexion totale aura lieu par :

$$2d = n\lambda \quad \left(\sin \frac{\theta}{2} = 1\right)$$

La courbe représentative de l'énergie cinétique E de la particule en fonction de son vecteur d'onde,

$$k' = \frac{2\pi}{\lambda} = \frac{n\pi}{a} ; \text{ se composera d'une succession}$$

d'axes avec des discontinuités pour les valeurs de $E = \pm \frac{\pi}{a}$, $\pm \frac{2\pi}{a}$, $\pm \frac{n\pi}{a}$.

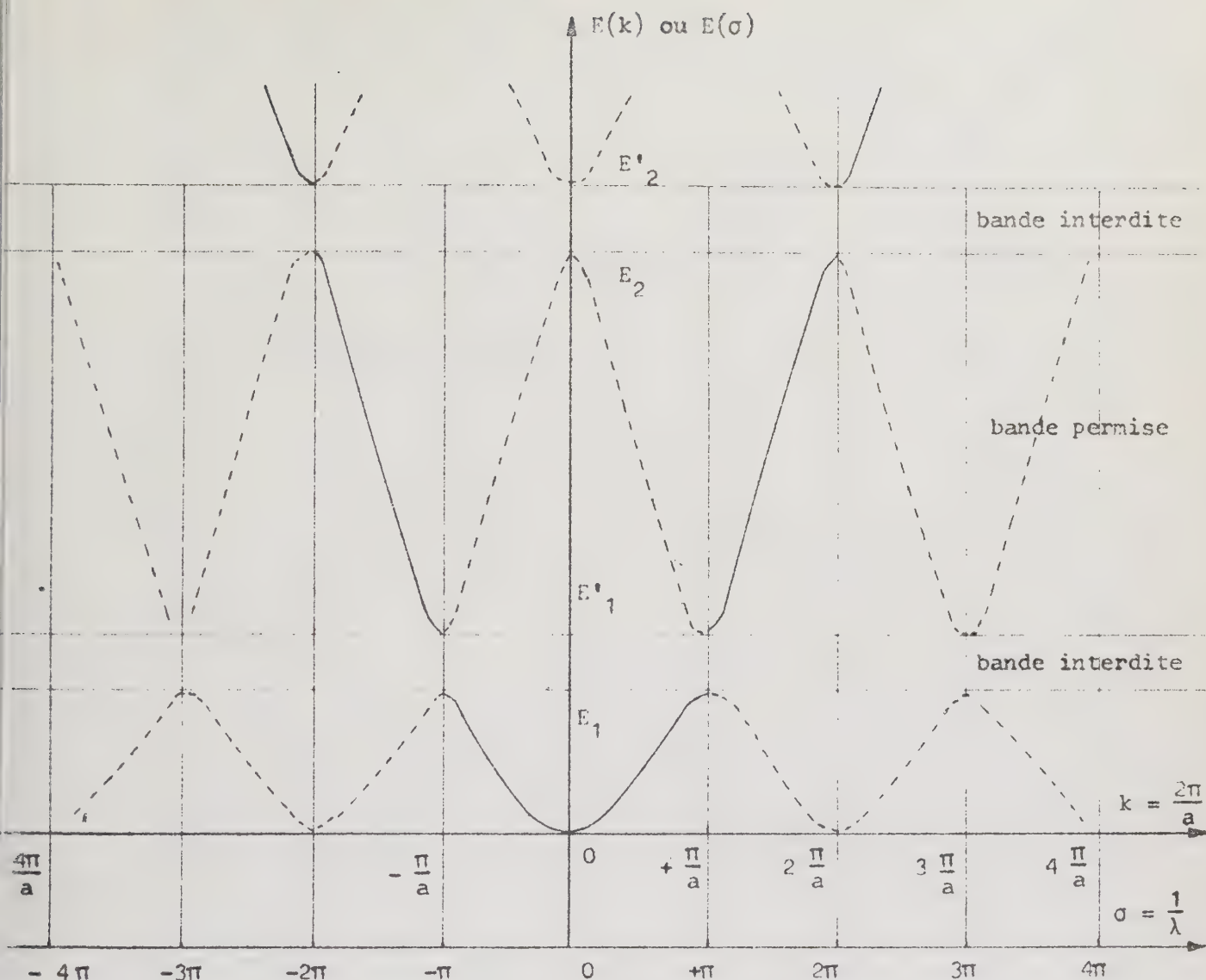


Ces expressions et la courbe représentative $f(E)$ montrent clairement qu'à la température de 0°K , la probabilité varie de manière discontinue suivant les valeurs de E .

A la température de 0°K , tous les niveaux d'énergie pour lesquels $E < E_F$, sont donc complètement remplis et tous les niveaux pour lesquels $E > E_F$ sont vides.

Pour $T \neq 0^\circ\text{K}$ et pour les faibles valeurs de E , $f(E)$ vaut toujours 1 et les électrons vont se caser, en commençant par les niveaux de basse énergie jusqu'à la limite E_F .

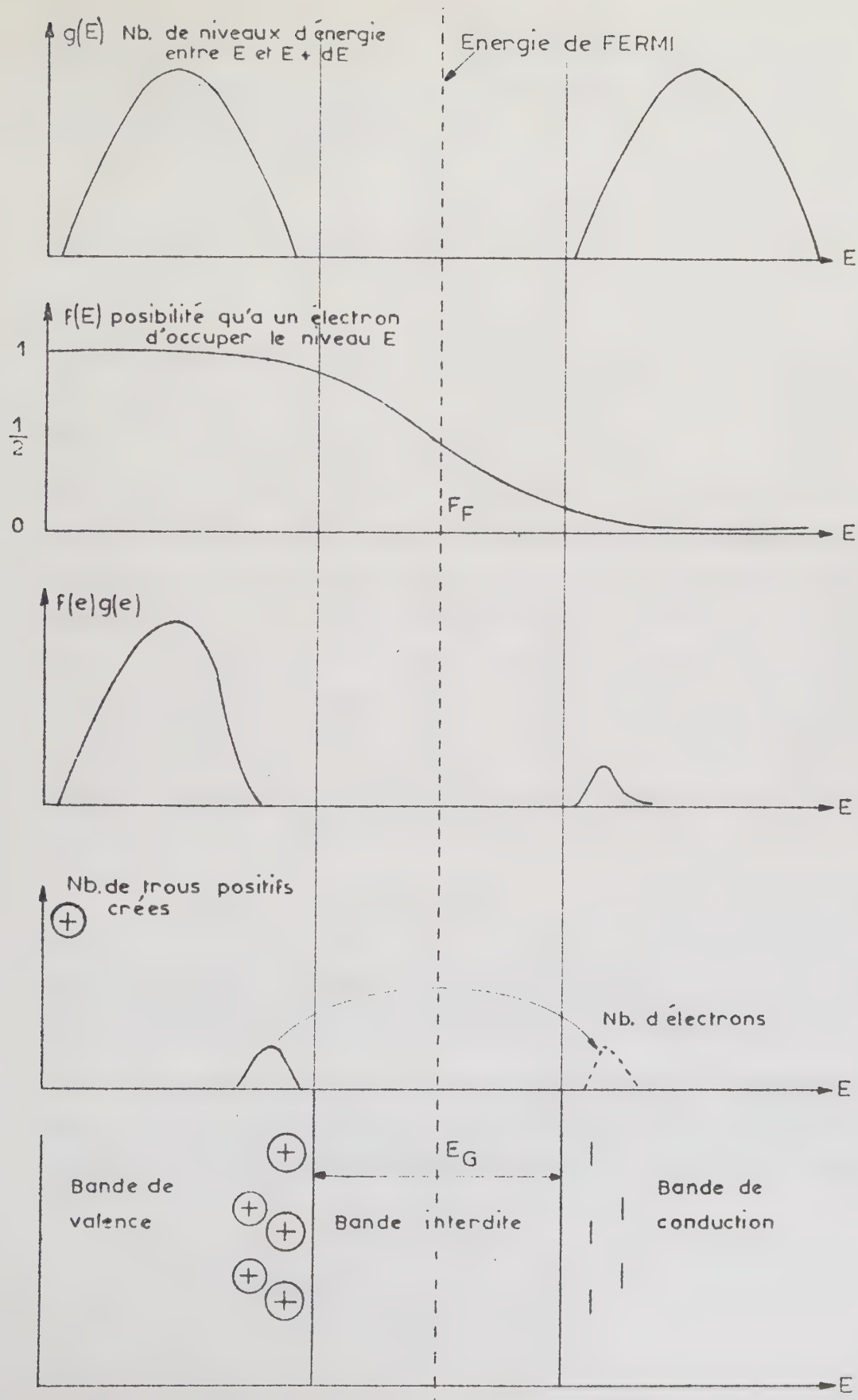
La probabilité, pour $E = E_F$ est de 50 % et ceci fait figurer le niveau de Fermi au milieu de la bande interdite séparant les deux bandes permises de plus haute énergie dans le diagramme des bandes.



La bande $0 < E(k) < E_1$, est appelée bande permise, les ondes de de Broglie peuvent se propager, l'électron peut occuper le niveau d'énergie.

Pour $E_1 < E(k) < E'_1$, il y a réflexion totale, des ondes de de Broglie, aucun électron libre dans le solide ne peut posséder cette énergie. Cette bande est appelée bande interdite.

Dans une bande permise, tous les niveaux d'énergie ne peu-



vent pas être occupés par des électrons, les restrictions de la quantification étudiées au paragraphe précédent restent valables, le nombre de ces niveaux discrets permis est numériquement fonction du nombre N d'atomes constituant le cristal.

$$E_p = p^2 \frac{\pi^2 h^2}{2m N^2 a^2} = \frac{n^2 h^2}{8m L^2}$$

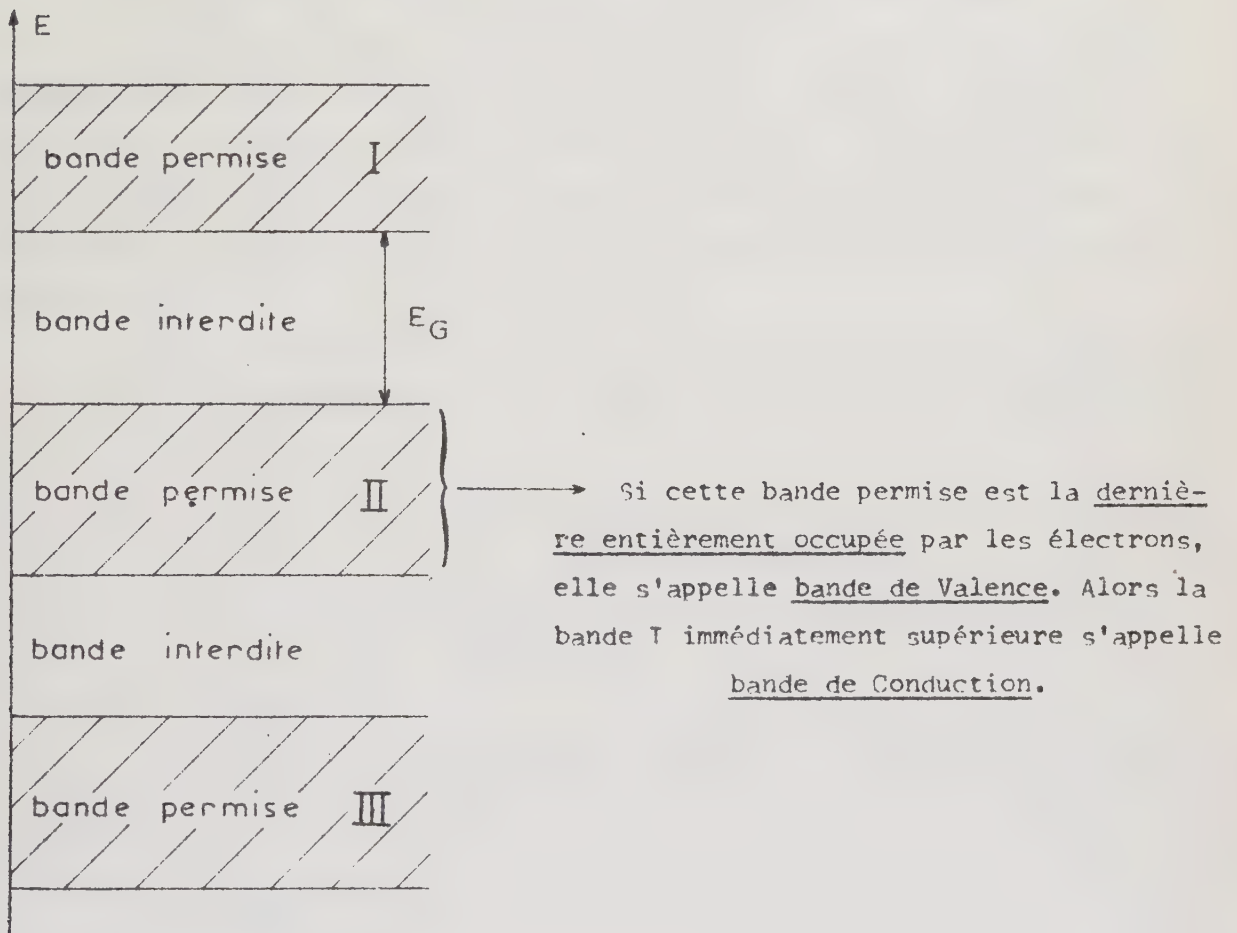
Pour les cristaux de dimensions usuelles, le nombre de plans réticulaires est très grand, et les bandes permises sont très nombreuses.

Un simple examen de la courbe $E(k)$ ou $E(\sigma)$, représentative de l'énergie de l'électron en fonction du vecteur d'onde de l'onde associée de de Broglie (ou du nombre d'ondes de cette onde associée), met en évidence, pour une seule valeur quantifiée E de l'énergie dans une bande permise, deux valeurs correspondantes du vecteur d'onde $(+k)$ et $(-k)$. Il existe donc pour chaque électron correspondant à la valeur $+k$ du vecteur d'onde, un second électron correspondant à la valeur $-k$ du vecteur d'onde. Le couple d'électrons $(+k)$ et $(-k)$ peut donc être considéré comme le couple d'électrons de vitesses $(+v)$ et $(-v)$. Il est clair que la contribution de ce couple d'électrons animés de vitesses opposées sera nulle $+ev + (-ev) = 0$

Le même raisonnement étendu à tout niveau d'énergie de chaque bande permise permet de dire que : toute bande d'énergie permise, complètement occupée n'apporte aucune conductibilité électrique, l'effet de ses électrons s'annulent par couple à chaque niveau.

Par contre, si une bande permise n'est qu'incomplètement remplie, il n'y a plus de compensations possibles, et l'application d'un champ électrique mettra les électrons en mouvement et leur permettra d'oc-

cuper les niveaux vacants. Ce sont donc les bandes permises incomplètes qui permettent la conductibilité électrique.



- Les niveaux d'énergie des électrons dans un cristal, se présentent comme une succession de bandes permises et de bandes interdites.

- E_G : largeur de la bande interdite, appelée énergie d'activation intrinsèque du cristal ; c'est-à-dire, l'énergie nécessaire pour qu'un électron de la bande puisse passer dans la bande I.

- Toutes les bandes permises sont entièrement occupées à l'exception de celle possédant l'énergie supérieure dont le remplissage dépend de la température thermodynamique du cristal.

- à 0°K la bande de valence de tous les solides cristallins est entièrement occupée ce qui confère à ces solides, la qualité d'isolants parfaits.

1°) Répartition des électrons en fonction de l'Energie

La conductibilité électrique d'un métal peut être prévue théoriquement, mais pour ce faire, il est nécessaire de connaître comment les électrons sont répartis entre les différentes bandes d'énergie permises. En plus du principe d'exclusion de Pauli qui nous indique qu'il ne peut y avoir que 0,1 ou 2 électrons au plus par niveau quantique, le problème revient à savoir :

- a) Quelle est la variation du nombre de niveaux d'énergie disponibles entre les énergies E et l'énergie $E + dE$ en fonction de E ;

Appelons ce nombre $g(E) dE$.

- b) Quelle est la probabilité $f(E)$ qu'a un électron d'occuper un niveau d'énergie E .

La probabilité $f(E)$ nous est donnée par la statistique quantique de Fermi-Dirac qui s'applique aux particules dont le spin est demi-entier, électrons, neutrons ...

Elle est :

$$f(E) = \frac{1}{e^{(E-E_F)/kT} + 1}$$

où k est la constante de Boltzmann et vaut $8,61 \cdot 10^{-5}$ eV

et T la température absolue.

E_F est l'énergie de Fermi ; cette énergie dépend de la nature du milieu

considéré (cristal - métal) mais ne varie que très peu en fonction de la température T.

Faisons tendre dans cette formule $kT \rightarrow 0$ et $E_F \rightarrow E_{F0}$.

La différence $E - E_{F0}$ est négative si le niveau E est inférieur à E_{F0} et l'exponentielle tend vers $e^{-\infty} = 0$.

C'est-à-dire,

$$f(E) = \frac{1}{e^{-\infty} + 1} = 1$$

$$\text{quand } kT \rightarrow 0$$

$$\text{et } E < E_{F0}$$

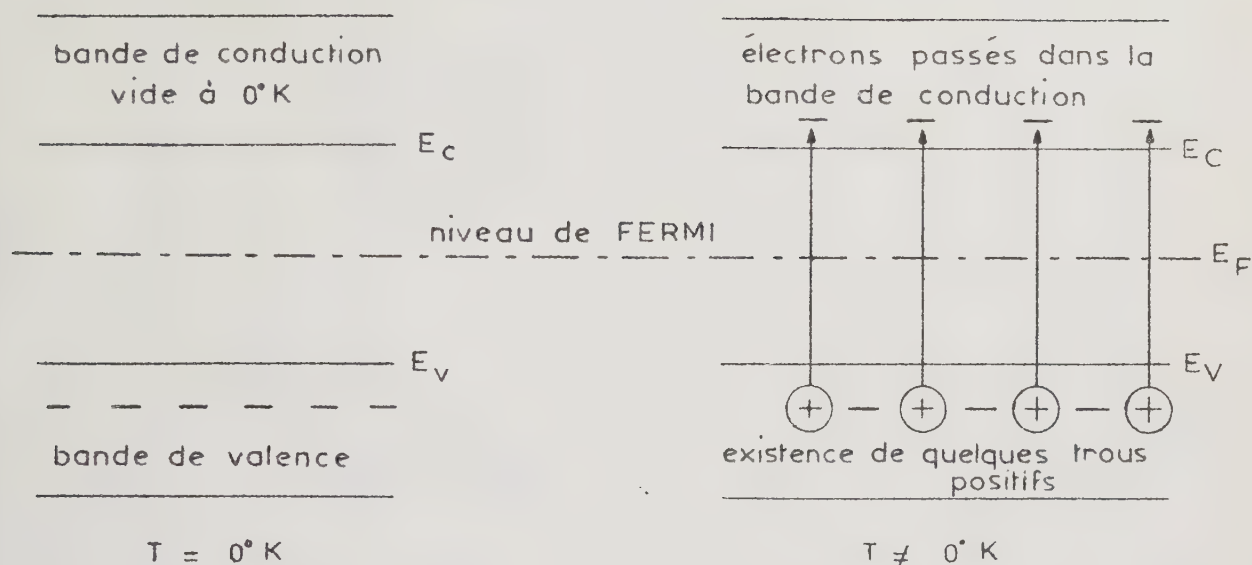
Si, au contraire, le niveau d'énergie E est supérieur à E_{F0} , la différence $E - E_{F0}$ est positive et l'exponentielle tend vers $e^{+\infty} = \infty$

C'est-à-dire,

$$f(E) = \frac{1}{e^{+\infty} + 1} = 0$$

$$\text{quand } kT \rightarrow 0$$

$$\text{et } E > E_{F0}$$



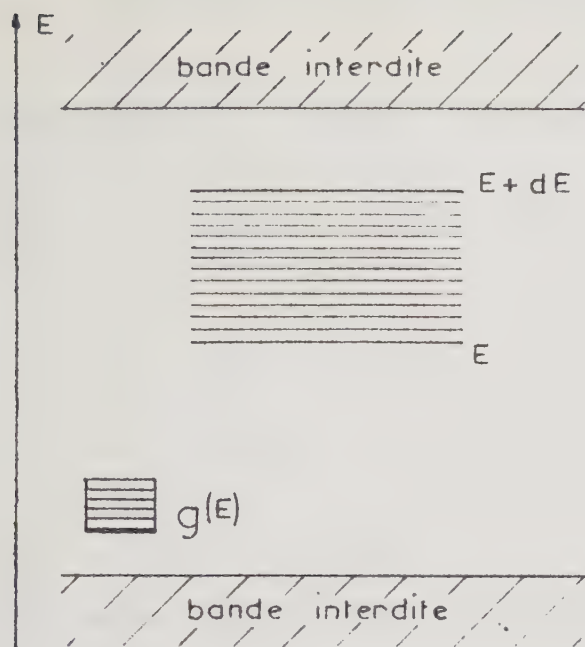
En conclusion : tout semi-conducteur est un parfait isolant
à la température $0^\circ K$

$g(E)$ étant la densité des états quantiques, est caractéristique
des atomes constitutifs du cristal considéré et de la struc-
ture de celui-ci.

$g(E)$ est donc nulle dans toute la bande interdite.

$g(E)$ est maximale au milieu de la bande permise mais nulle aux
extrémités de cette bande.

Ceci nous permet de connaître la fraction $\frac{dN}{N}$ des électrons dont
l'énergie se trouve située entre les énergies E et $E + dE$.



$$\frac{dN}{N} = g(E) dE \cdot f(E)$$

Les graphiques se rapportant au paragraphe "Répartition des électrons en fonction de l'énergie" se trouvent page 55.

2°) Niveau de Fermi dans un semi-conducteur intrinsèque

Nous avons vu que dans un tel semi-conducteur, $n_i = p_i$ et qu'à la température de 0°K la bande de conduction était vide. Soit N_C la densité des états énergétiques occupés par les électrons dans la bande de conduction à une température infiniment grande, et soit n_i cette densité en fonction de la température ; la valeur de n_i est :

$$n_i = N_C e^{\frac{-E_C - E_F}{kT}}$$

de même, si N_V est la densité des états occupés par des "trous" dans la bande de valence dans les mêmes conditions, la densité p_i à T°K est :

$$p_i = N_V e^{\frac{-E_F - E_V}{kT}}$$

la valeur du niveau de Fermi est alors :

$$E_F = \frac{E_C + E_V}{2} + kT \log \frac{N_V}{N_C}$$

si $T = 0$, le deuxième terme du second membre s'annule, et l'expression se réduit à :

$$E_F = \frac{E_C + E_V}{2}$$

$T = 0$

3°) Niveau de Fermi dans un semi-conducteur dopé

a) Dans un semi-conducteur de type N (qui a reçu des atomes donneurs d'électrons)

Du germanium pur (contenant moins de un atome étranger pour 10^{10} atomes de germanium) a été dopé à l'aide d'antimoine, à raison de un atome de Sb pour 10^8 atomes de germanium.

L'atome Sb, devient l'ion Sb^+ en cédant un de ses électrons périphérique qui devient libre de circuler dans le réseau. L'ion Sb^+ (rayon atomique $2,8 \text{ \AA}$) ne contribuera pas plus à la conductibilité électrique que l'atome Ge (rayon atomique $2,4 \text{ \AA}$) dont il a pris la place mais l'électron qu'il a cédé y contribuera.

La conductibilité du cristal intrinsèque qui était :

$$\sigma_i = en_1(\mu_n + \mu_p) \quad \text{est devenu :}$$

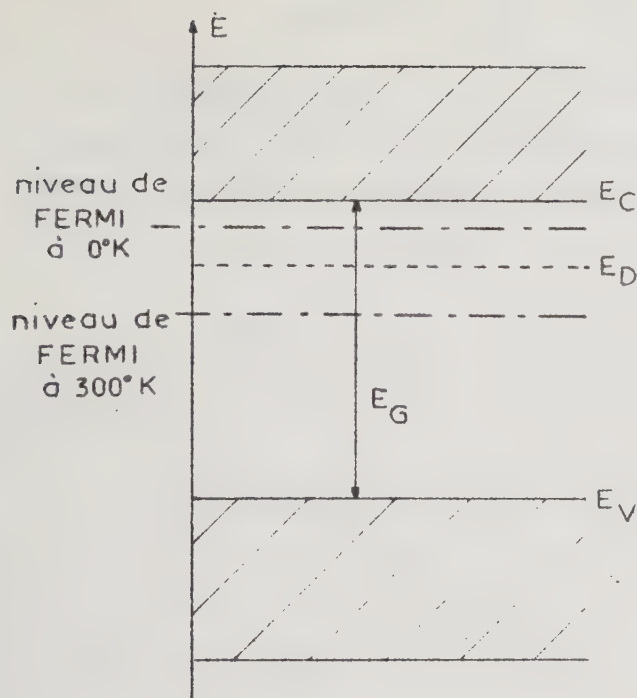
$$\sigma = e(n\mu_n + p\mu_p) \quad \text{//} \quad e \cdot n \cdot \mu_n$$

et on a : $\sigma \gg \sigma_i \quad \text{car} \quad n \gg (p = n_i)$

Le schéma des bandes d'énergie est modifié car l'ion Sb^+ de l'atome donneur se place à un niveau d'énergie situé dans la bande interdite et légèrement au-dessous du niveau inférieur de la bande de conduction.

Le niveau de Fermi se trouve donc entraîné vers la bande de conduction.

- position du niveau "donneur"
dans un cristal du type N.



$$E_C - E_D = 0,05 \text{ eV}$$

Un tel cristal, se comporte comme un semi-conducteur ayant une énergie intrinsèque d'activation très réduite $E_D \ll E_G$.

$$E_G = 0,72 \text{ eV}$$

(cristal intrinsèque)

De ce fait, le passage d'un électron dans la bande de conduction se trouve grandement facilité ; c'est la conductibilité extrinsèque du type N.

En considérant, d'une part, que la concentration en ions Sb^+ est pratiquement la même que la concentration en atomes Sb (tous les atomes donneurs ionisés), et d'autre part, que le cristal est électriquement neutre ($n = p + D \approx D$), la statistique de Fermi-Dirac donne :

$$\frac{n}{D} = 1 = \frac{N_C}{D} e^{-\frac{E_C - E_F}{kT}}$$

et le niveau de Fermi a pour valeur :

$$E_F = E_C - kT \log \frac{N_C}{D}$$

D étant la concentration en atomes donneurs,

N_C étant la densité des niveaux énergétiques disponibles dans la bande de conduction.

b) Dans un semi-conducteur du type P (qui a reçu des atomes accepteurs d'électrons)

Le germanium pur est dopé à l'indium (rayon atomique $\overset{\circ}{\text{A}}$). L'indium ne possède que trois électrons périphériques, il peut donc emprunter un quatrième électron pour devenir l'ion In^- ($\text{In} + e^- = \text{In}^-$) alors qu'un trou positif apparaît à l'endroit où l'électron a été emprunté ($-e^- = +$).

Le comportement de l'indium dans le cas des semi-conducteurs du type N, est alors analogue à celui de l'antimoine dans le cas des semi-conducteurs du type N.

On peut considérer,

$$p = n + A \quad \neq \quad A \quad (\text{concentration en accepteurs})$$

avec $n \ll A$

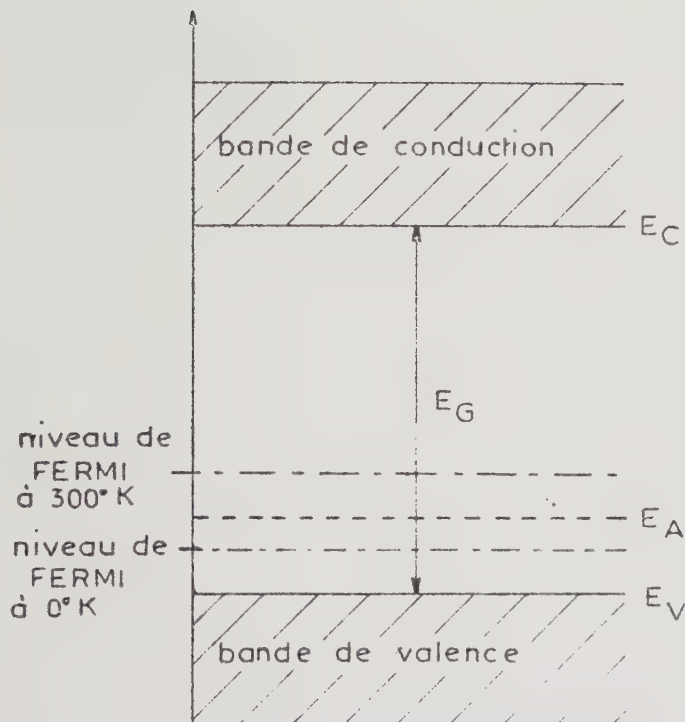
et le niveau de Fermi se détermine comme plus haut par,

$$\frac{p}{A} = 1 \quad \neq \quad \frac{N_v}{A} e^{-\frac{-E_v + E_F}{kT}}$$

N_v étant la densité des niveaux énergétiques disponibles dans la bande de valence.

L'ion In^- de d'atome accepteur se place ici à un niveau d'énergie situé dans la bande interdite et légèrement au-dessus du niveau supérieur de la bande de valence. Le niveau de Fermi se trouve donc entraîné vers la bande de conduction, et a pour valeur :

$$E_F = E_V + kT \log \frac{N_V}{A}$$



- position du niveau "accepteur" dans un cristal du type P

Dans les cas cités ci-dessus, semi-conducteurs des types N et P, le niveau de Fermi se trouve entre le niveau donneur et la bande de conduction pour le premier cas et entre le niveau accepteur et la bande de valence dans le deuxième cas. Si l'on abaisse la température à 0° K, le niveau de Fermi se trouvera, dans le premier cas, situé entre le niveau donneur et la bande de conduction et, dans le deuxième cas, situé entre le niveau accepteur et la bande de valence.

Le déplacement du niveau de Fermi atteint des états extrêmes si le dopage en impuretés est poussé à des concentrations de l'ordre de 10^{19} , 10^{20} atomes cm^{-3} au lieu de 10^6 atomes cm^{-3} dans le cas des semi-conducteurs usuels. Le niveau de Fermi est alors rejeté dans la bande de conduction, dans

les semi-conducteurs de type N, et dans la bande de valence, dans les semi-conducteurs de type P et le rejet du niveau de Fermi hors de la bande interdite confère au semi-conducteur, une conductibilité comparable à celle d'un métal ; on dit que le semi-conducteur est dégénéré.

CHAPITRE III

LA DETECTION DES PARTICULES α

I - METHODE DE DETECTION DES RAYONS α

Depuis le 24 février 1896, date à laquelle Henri Becquerel fit part à l'Académie des Sciences de Paris, de sa découverte fondamentale : "les sels d'uranium émettent des rayons capables d'impressionner une émulsion photographique recouverte d'une plaque d'aluminium opaque à la lumière", de nombreux travaux ont été faits pour l'identification des rayonnements nucléaires.

Les techniques les plus courantes de détection et de spectrométrie des particules α , jusqu'à la découverte des détecteurs à semi-conducteurs, étaient :

- l'émulsion photographique,
- le scintillateur au sulfure de zinc,
- la chambre d'ionisation à gaz,
- le compteur du type Geiger-Muller,
- la chambre d'ionisation à grille.

1°) L'émulsion photographique

L'action des rayons s'échappant d'un corps radioactif sur l'émulsion photographique est bien connue puisque c'est elle qui a conduit Henri Becquerel à découvrir la radioactivité.

Plusieurs chercheurs ont utilisé l'émulsion photographique pour la détection des phénomènes radioactifs : Becquerel, 1896 ; Curie, 1898 ; Stèp et Becke, 1904 ; Baret, 1904.

En 1927, Alexandrov utilise l'émulsion photographique à des fins de localisation de minéraux uranifères dans les roches.

Jusqu'à ces dernières années cependant, l'action des rayons sur l'émulsion photographique se limitait à un voile plus ou moins important, le grain trop gros des émulsions employées ne permettant ni de distinguer les trajectoires, ni de faire une numération même approximative des rayons détectés.

Par suite de l'augmentation de la concentration en bromure d'argent (dix fois plus forte environ que dans les plaques ordinaires) et de certaines modifications techniques de la fabrication, on possède actuellement des plaques sensibles dites "plaques pour recherche nucléaire" à grain très fin, dont le voile chimique est considérablement réduit, et qui permettent de "photographier" les particules nucléaires et cosmiques.

En 1949, Coppens, Picciotto et Yagoda utilisent ces émulsions pour l'identification des radioisotopes naturels par la longueur des traces et la détermination des teneurs en éléments radioactifs en fonction de la densité des traces.

Les traces laissées sur l'émulsion, après un développement simple, se présentent sous la forme de traits rectilignes dont les longueurs sont fonction de l'énergie des particules. Il est donc théoriquement possible d'établir le spectre α d'un échantillon minéralogique radioactif en mesurant les longueurs des traces α .

L'exploitation des informations qu'elle fournit est toutefois rendue difficile par les phénomènes d'autoabsorption dans les sources à étudier, et la mesure des longueurs de traces est une opération longue et fastidieuse qui doit tenir compte des traces et du retrait de la gélatine (par déshydratation).

L'émulsion photographique reste encore aujourd'hui un des détecteurs les plus sensibles au rayonnement α et le plus commode à mettre en oeuvre (matériel simple, prix de revient modique) ainsi que le seul outil permettant l'étude de la répartition exacte des centres émetteurs α dans les roches.

2°) La méthode des scintillations

Les différents scintillateurs utilisés sont : le sulfure de zinc activé à l'argent ou au cuivre, la platinocyanure de baryum et le tungstate de calcium.

La découverte de la méthode des scintillations est due à Crookes, Elster et Geitel dans les premières années du XXe siècle. Cette méthode est basée sur le fait que des particules rapides provoquent aux points d'impact, des faibles scintillations lorsqu'elles frappent un écran fluorescent. La substance scintillatrice est étendue en mince couche sur une plaque de verre, et les scintillations sont observées au microscope.

Cette méthode convient pour l'observation du rayonnement alpha, et a l'avantage de n'être pas sensible aux électrons formant le rayonnement bêta. Le comptage des scintillations est très fatigant et ne donne que des résultats très imprécis ; cette méthode ne permet pas la spectrométrie.

Le scintillateur au sulfure de zinc forme l'élément détecteur du spinthariscopes (vision d'étincelles) qui permit à Rutherford de découvrir la transmutation artificielle.

Depuis plusieurs années, grâce au progrès des tubes électroniques, le comptage du rayonnement α par le ZnS accouplé à la photocathode du tube photomultiplicateur et associé à une échelle de comptage électronique, est devenu une opération commode.

Spectrométrie par scintillation : les scintillateurs au sulfure de zinc ne fournissant pas de scintillations dont l'intensité est proportionnelle à l'énergie des rayons α détectés, la spectrométrie par ce détecteur consiste à discriminer les différents rayons α détectés, par la longueur de leur parcours dans un absorbant gazeux, soit par variation des distances source-scintillateur dans un milieu à coefficient d'absorption constant (pression constante), soit par variation du coefficient d'absorption (variation de la pression gazeuse) avec distance constante.

3°) Méthode de la chambre humide - Chambre de Wilson

Elle consiste à rendre visible les trajectoires parcourues par les particules ionisantes en mettant à profit les propriétés que possèdent les ions de servir de centres de condensation pour la vapeur d'eau saturée.

La chambre d'ionisation est constituée d'un cylindre rempli d'air saturé de vapeur d'eau, clos à sa partie supérieure par une glace et à sa partie inférieure par un piston qu'un dispositif approprié permet d'abaisser brusquement, ce qui augmente le volume de la chambre d'une

fraction de sa valeur. Si un agent ionisant traverse la chambre au moment de la détente, les ions formés sur son passage par l'ionisation des molécules gazeuses ($\epsilon = 35$ eV) servent, quand l'appareil est bien réglé, de centres de condensation pour les gouttelettes. Une ligne fine de brouillard marque ainsi le passage de l'agent ionisant, dont on peut observer directement la trajectoire ou la photographie.

Placée dans un fort champ magnétique uniforme qui incurve les trajectoires, la méthode de la chambre humide s'est révélée d'une fécondité extrême pour l'étude des rayons de courbure des trajectoires, qui permet de déduire l'énergie des particules.

4°) Méthode des chambres d'ionisation

Les particules ionisantes, sont encore admises dans un milieu gazeux ; elles ionisent le milieu absorbant et les produits de l'ionisation, ions et électrons, sont séparés par un champ électrique et collectés sur des électrodes. Ici encore, l'énergie nécessaire pour la création d'une paire ion-électron est $\epsilon \simeq 35$ eV.

La chambre d'ionisation inventée par Greinacher peut être associée à un électroscope, à un électromètre ou encore, par l'intermédiaire d'un (tube électronique électromètre) amplificateur à des ensembles de comptage si la chambre fonctionne en impulsion ou à tout autre appareil de mesure si la chambre fonctionne en "courant". La spectrométrie par chambre d'ionisation est donc possible si celle-ci fonctionne à impulsions.

La chambre d'ionisation à grille, dernier perfectionnement dans cette méthode, donne des résultats excellents, et si son pouvoir de résolution est inférieur à celui des détecteurs à semi-conducteurs

et sa mise en oeuvre beaucoup plus délicate, elle permet néanmoins, par la grande surface utile des sources qu'elle admet et son rendement géométrique voisin de 2π , une très bonne et très rapide spectrométrie.

5°) Les compteurs du type Geiger

a) Le compteur à pointe de Geiger (1913)

L'impulsion de courant de l'ionisation produite par une particule ionisante peut être notablement amplifiée si chaque ionisation primaire est à même d'ioniser à son tour d'autres molécules par chocs. Il en est précisément ainsi dans le compteur à pointe de Geiger.

Ce compteur est formé d'un cylindre conducteur porté au potentiel 0 et d'une pointe fine métallique parfois terminée par une petite sphère, isolée du cylindre et portée à une très haute tension, à peine inférieure à la tension disruptive. Toute particule ionisante pénétrant dans cette chambre où règne l'atmosphère gazeuse, produit une ionisation primaire ; les ions accélérés par le champ électrique, ionisent par chocs les molécules gazeuses, ce qui provoque une décharge. Les impulsions de courant sont transformées en impulsions de tension par une résistance électrique de haute valeur et transmises pour exploitation à un ensemble électronique de comptage.

b) Le compteur à fil de Geiger-Müller (1928)

Il fonctionne suivant le même principe que le précédent, mais ici, l'anode est un fil très fin.

Ces compteurs à fil, sauf dans la version fonctionnement en régime proportionnel, ne peuvent servir à la spectrométrie.

6°) Les détecteurs à semi-conducteur

En 1949, MacKay, pour la première fois, détecte des particules α à l'aide d'une jonction dans un semi-conducteur en germanium ; mais l'utilisation et le développement des semi-conducteurs à des fins de spectrométrie ne se fit que lorsqu'il apparut que l'amplitude des impulsions électriques issues du ^{semi-}conducteur était proportionnelle à l'énergie des particules détectées.

Dans une chambre d'ionisation à gaz, le gaz détecteur est ionisé par les particules chargées. Cette ionisation produit des ions de charge + et de charge - qui sont ensuite collectés pour les électrodes de la chambre. La mesure de la quantité totale d'électricité produite par ces charges permet de connaître l'énergie ΔE abandonnée par la particule dans le milieu détecteur. Pour les gaz de remplissage des chambres d'ionisation, l'énergie nécessaire à la création d'une paire d'ions, se situe aux environs de 30 à 35 eV.

Un détecteur à semi-conducteur se comporte exactement comme une chambre d'ionisation solide pour laquelle l'énergie nécessaire à la création d'une paire "d'ions", n'est que de l'ordre de 3 eV. Les données actuelles situent ces énergies nécessaires à :

$$E_{\text{ion.Si}} = 3,61 \text{ eV}$$

$$E_{\text{ion.Ge}} = 2,94 \text{ eV}$$

c'est-à-dire, dix fois moins que pour les gaz de remplissage des chambres d'ionisation classiques. Si, d'autre part, on considère qu'une par-

ticule chargée perd principalement son énergie cinétique par interaction coulombienne avec les charges du milieu absorbant, on peut admettre que le pouvoir d'arrêt des cristaux de germanium et de silicium est 10^3 fois supérieur à celui d'un gaz à la pression normale.

Dans un semi-conducteur, l'interaction d'une particule chargée avec les électrons du milieu, se traduit par le saut d'un électron de la bande interdite séparant la bande de valence de la bande de conduction. L'énergie maximale transférée à un électron par une particule chargée peut atteindre :

$$E_{\max} = 4 \frac{m}{M} E_{\text{cin}}$$

avec :

m la masse de l'électron,
 M la masse de la particule chargée, α par exemple,
 E_{cin} l'énergie cinétique de la particule.

Cette énergie $E_{\max}$ pouvant être transférée soit par des rayons α de l'ordre de 2 MeV, soit par des protons de l'ordre de 1 MeV, est d'environ 1 keV.

On définit l'énergie moyenne ϵ nécessaire à la création de "l'ionisation élémentaire", c'est-à-dire, à la création d'une paire "d'électron-trou", comme le rapport de l'énergie de la particule ionisante au nombre d'électrons chassés de la bande de valence et placés dans la bande de conduction, ou ce qui revient au même, au nombre de trous + créés dans la bande de valence.

$$\epsilon = \frac{E_{cin}}{[+]_{val}} = \frac{E_{cin}}{[e]_{cond}}$$

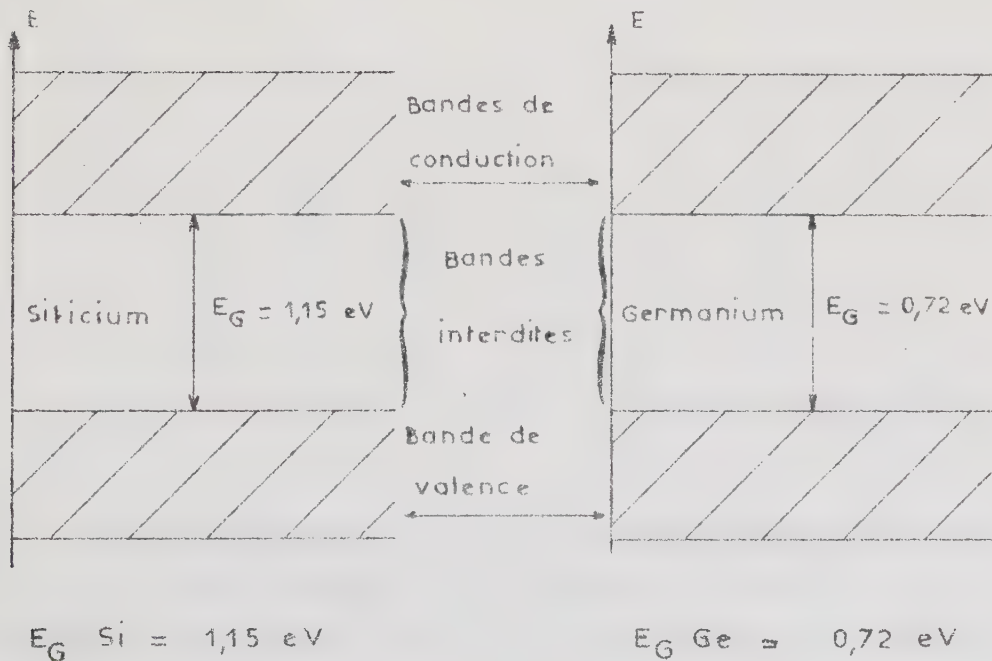
Les valeurs trouvées par MacKay et MacAfee sont :

$$\epsilon_{silicium} = 3,50 \text{ eV}$$

et

$$\epsilon_{germanium} = 2,94 \text{ eV}$$

Ces valeurs sont nettement supérieures aux énergies nécessaires pour le franchissement des bandes interdites et sont :



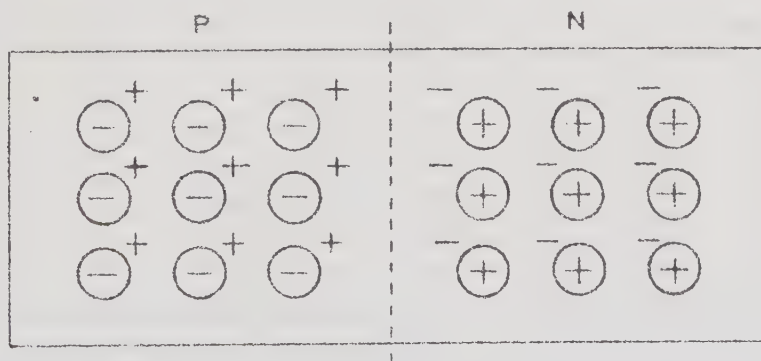
$$E_G \text{ silicium} = 1,15 \text{ eV}$$

$$E_G \text{ germanium} = 0,72 \text{ eV}$$

- Le détecteur Jonction P.N.

L'utilisation comme détecteur de particules chargées, d'une chambre d'ionisation solide faite d'un matériau semi-conducteur, consiste à recueillir aux bornes de ce détecteur, les informations électriques issues de l'absorption des particules dans ce matériau.

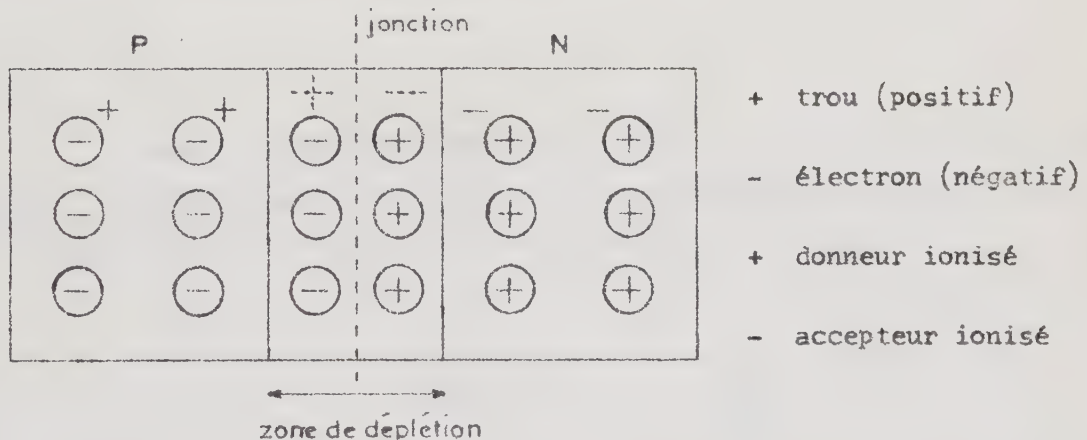
Une jonction P.N. est constituée par le contact dans le même cristal semi-conducteur de deux régions très différentes l'une de l'autre du point de vue électronique.



L'une, la région P (positive) obtenue en ajoutant au matériau de base, sur l'une des faces d'une plaquette de germanium ou de silicium par exemple, une impureté trivalente appartenant au IIIème Groupe de la classification périodique des éléments (Aluminium, Gallium, Indium) et qui ne possède par conséquent, que trois électrons de valence. Ces éléments à trois électrons de valence sont appelés accepteurs d'électrons, on dit aussi qu'ils apportent des trous en excès.

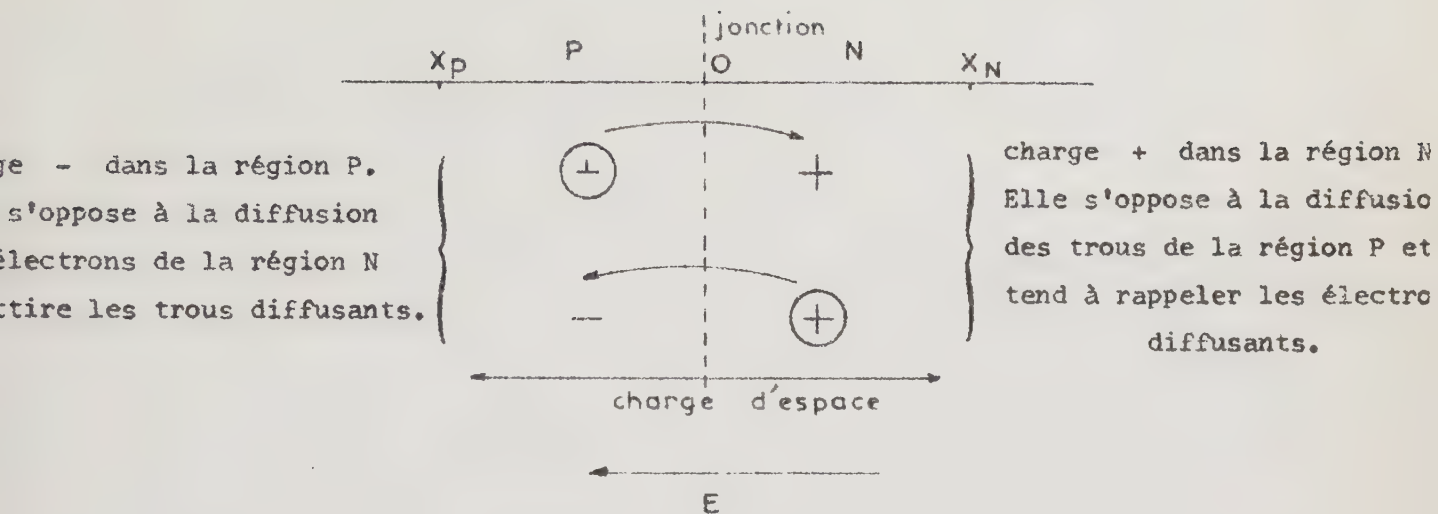
L'autre, la région N, obtenue en ajoutant au même matériau de base et sur l'autre face, une impureté pentavalente appartenant au Vème Groupe de la classification périodique des éléments (phosphore, arsenic, antimoine) et possédant cinq électrons de valence. Ces éléments à cinq électrons de valence sont appelés donneurs d'électrons.

Dès la formation de la "jonction", et au voisinage immédiat de la zone de contact, les charges positives ou trous migrent par diffusion dans la zone négative N par un appel d'équilibre car la concentration en trous $+$ de la zone P est bien supérieure, par construction, à la concentration en trous $+$ dans la zone négative (N). Simultanément et pour la même raison, les électrons $-$ de la zone N diffusent dans la zone P.



Par ces phénomènes de diffusion, il s'établit, de part et d'autre de la ligne de séparation appelée jonction, une zone de charge négative du côté positif P, et une zone de charge positive du côté négatif N. Ces processus sont toutefois limités, tant en distance qu'en intensité, par la naissance :

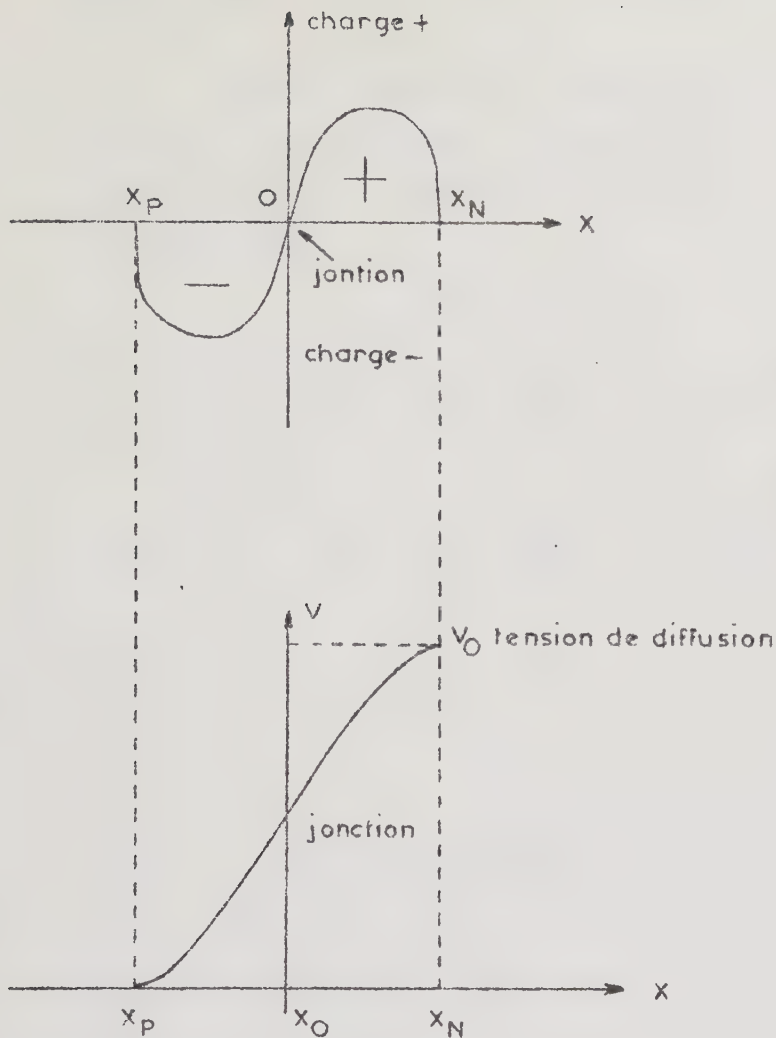
- a) dans la zone de départ, de charges de signe contraire à celles des charges diffusantes et qui tendent à les rappeler,
- b) dans la zone d'arrivée, d'accumulation de charges qui s'opposent à celles du même signe qui tenteraient de diffuser.



L'accumulation des charges de part et d'autre de la jonction crée dans la zone de transition x_p x_n , une charge d'espace génératrice d'un champ électrique $\vec{E}$ et d'une tension de diffusion V_{diff} tels que :

$$\vec{E} = - \overline{\text{grad } V} = - \frac{dV}{dx}$$

D'après les études faites par Schottky, les charges se répartissent uniformément en densité de part et d'autre de la jonction, où elle est nulle, jusqu'aux limites de la zone de charge d'espace x_p et x_n .



La tension de contact est de l'ordre de quelques 10^{-1} volts dans les semi-conducteurs usuels (0,6 V pour le silicium).

Ainsi constituée, cette jonction P.N. se comporte exactement comme un condensateur plan aux faces parallèles et sa capacité s'exprime par :

$$C = \frac{\epsilon}{4\pi(|x_P| + |x_N|)}$$

ϵ étant la constante diélectrique du matériau de base (12 pour Si).

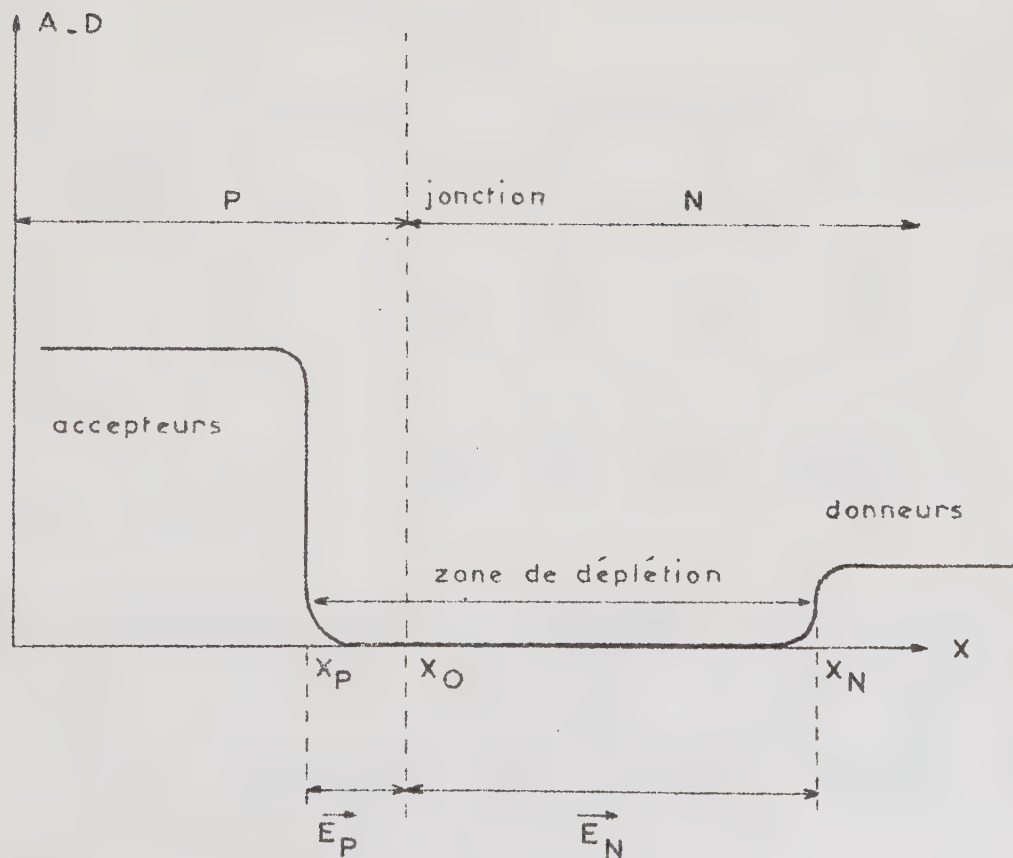
Le champ électrique $\vec{E}$ créé par les couches électrostatiques de part et d'autre de la jonction augmente considérablement la résistivité du matériau

dans une zone, appelée zone de déplétion, par suite de l'absence de porteurs de charges.

Ce champ électrique, fonction de la concentration en accepteurs et donneurs, est généralement de valeur différente de part et d'autre de la ligne de jonction. La dissymétrie est liée aux concentrations A (accepteurs) et D (donneurs) par :

$$\vec{E}_P = \left[\frac{\epsilon}{2\pi e} \frac{1}{A} V_{diff} \right]^{\frac{1}{2}}$$

$$\vec{E}_N = \left[\frac{\epsilon}{2\pi e} \frac{1}{D} V_{diff} \right]^{\frac{1}{2}}$$



Les expressions $\vec{E}_P$, $\vec{E}_N$ et le schéma ci-dessus montrent clairement que champ électrique et zone de déplétion sont proportionnels à la racine carrée des inverses des concentrations en accepteurs et en donneurs ; le champ étant maximum à la ligne de jonction.

Dans ces conditions, la jonction P.N. peut déjà servir de détecteur de particules ionisantes, mais la région sensible, serait trop étroite pour offrir aux particules incidentes, une région d'absorption ionisable suffisante.

Les expressions de E_P et E_N montrent en outre, que le champ varie proportionnellement à la racine carrée de la tension de diffusion.

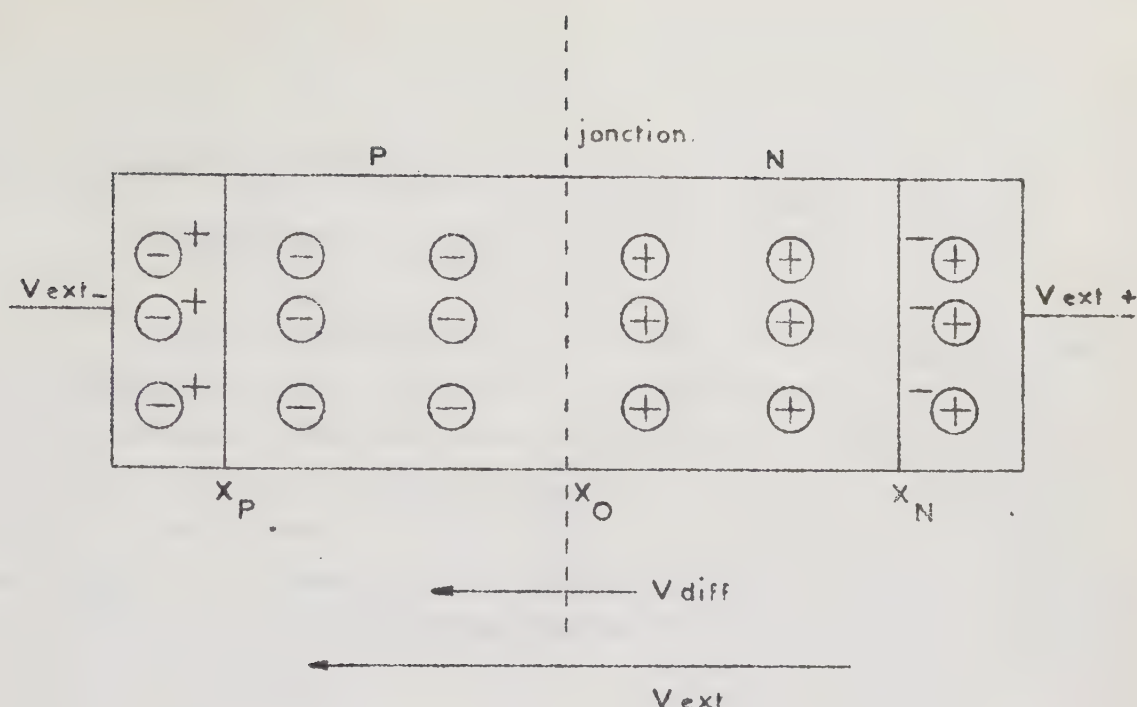
Si l'on applique aux bornes du détecteur ainsi constitué, une tension extérieure V_{ext} de même sens que la tension de diffusion, cette tension renforce les effets de la tension de diffusion V_{diff} en augmentant le champ total $\vec{E}$ et la largeur de la zone de déplétion ; on a :

$$x_P = - \left[\frac{\epsilon}{2\pi e} \frac{D}{A(A+D)} (V_{diff} + V_{ext}) \right]^{\frac{1}{2}}$$

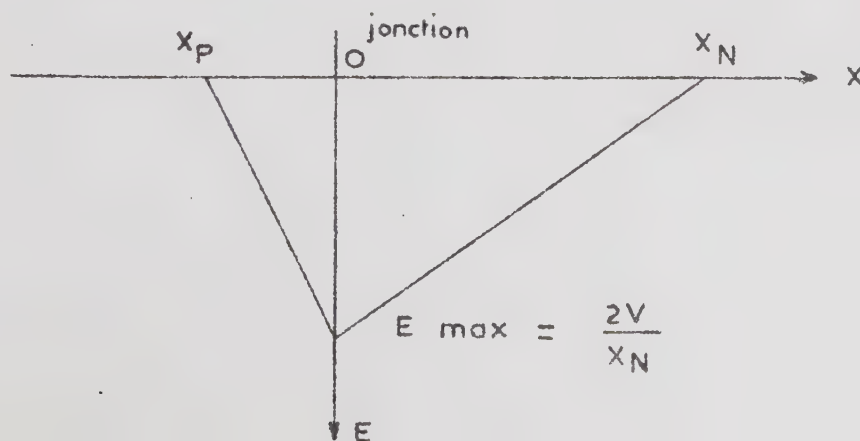
$$x_N = \left[\frac{\epsilon}{2\pi e} \frac{D}{D(A+D)} (V_{diff} + V_{ext}) \right]^{\frac{1}{2}}$$

et la largeur totale de la zone de déplétion :

$$x_N - x_P = \left[\frac{\epsilon}{2\pi e} \frac{A+D}{A-D} (V_{diff} + V_{ext}) \right]^{\frac{1}{2}}$$



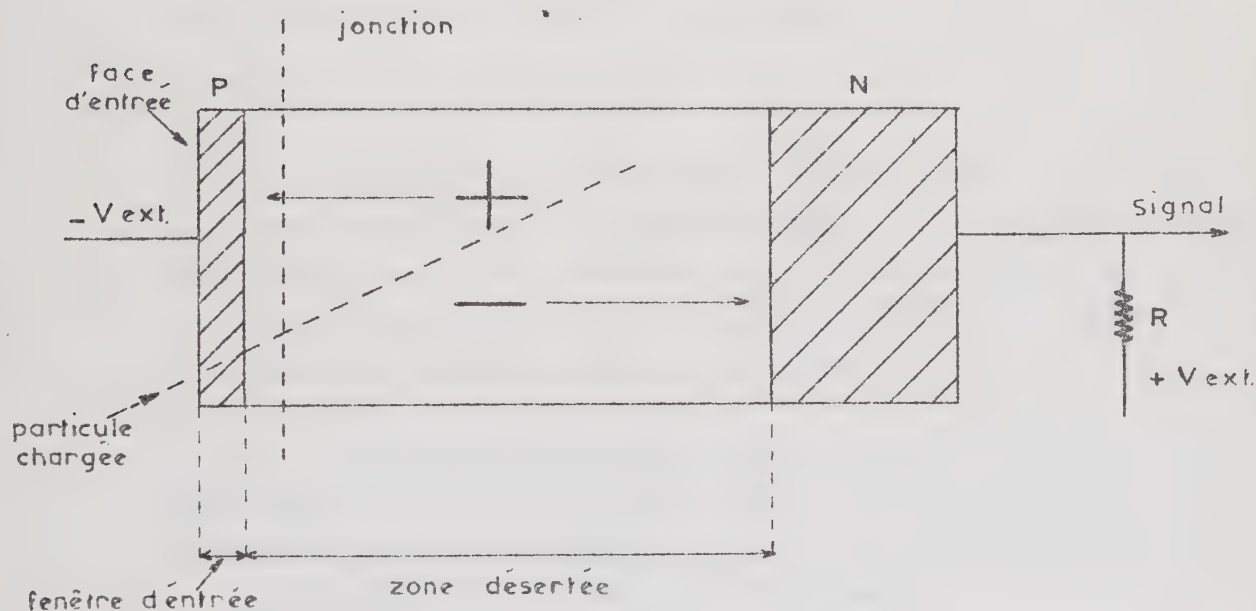
La différence de potentiel extérieure V_{ext} s'établissant progressivement, fait migrer les électrons de la région N vers le potentiel positif et les trous de la région P vers le potentiel négatif, ces migrations ayant pour conséquence immédiate de laisser sur place les porteurs fixes de charge positive en N et les porteurs fixes de charge négative en P. L'équilibre électronique est atteint dès que le nombre de porteurs fixes (positifs et négatifs) est suffisant pour entretenir aux bornes de la jonction, une ddp égale à la ddp extérieure. Le champ électrique dans la jonction P.N. en fonction de la distance de la ligne de jonction sera de la forme suivante :



II - LE DETECTEUR JONCTION P. N.

1°) Détection d'une particule :

Le détecteur constitué par la jonction P.N. se comporte comme une véritable chambre d'ionisation solide d'épaisseur $x_N - x_P$ où règne le champ électrique $\vec{E}$, les électrodes collectrices étant formées par les surfaces de contact des zones marginales non désertées. Le passage d'une particule chargée dans la zone de déplétion libère des porteurs de charge, électrons et trous, qui sont immédiatement séparés par le champ électrique $\vec{E}$ et collectés suivant leur polarité par les zones non désertées, positive et négative.



2°) Qualités d'un détecteur de particules chargées

Pour donner entière satisfaction, en spectrométrie des particules chargées, un détecteur doit posséder les qualités suivantes :

- Linéarité de réponse,
- Bonne résolution en énergie,
- Bonne résolution en temps.

a) Linéarité de réponse :

Pour que le signal électrique délivré par le détecteur soit une image la plus fidèle possible des énergies des particules dont on veut déterminer les spectres, il est nécessaire que l'absorption des particules se fasse totalement dans la partie sensible de la chambre d'ionisation solide qu'est la zone désertée du détecteur.

- Absorption

L'admission des particules incidentes dans le détecteur se fait, dans le cas idéal, perpendiculairement au plan de jonction, mais avant d'atteindre la zone désertée, ces particules doivent traverser une zone non désertée, donc non sensible (région P, par exemple), qui est la zone morte appelée "fenêtre d'entrée".

Le processus d'absorption d'une particule dans la matière, consiste principalement en l'interaction avec les électrons des atomes constitutifs de la matière absorbante, ce qui se traduit par l'excitation ou l'ionisation des atomes de l'absorbant.

La perte d'énergie dE d'une particule chargée de charge E et de masse M , le long de sa trajectoire et par unité de parcours est donnée par la relation de Bethe.

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4 \pi e^4 z^2 ZN}{mv^2} \text{Log} \frac{2m v^2}{I}$$

dans laquelle,

ze est la charge de la particule chargée incidente,

v - la vitesse -"- -"- ,

Z - le nombre atomique de la matière absorbante,

N - le nombre d'atomes en cm^{-3} de l'absorbeur,

I - le potentiel d'ionisation des atomes de l'absorbeur.

$$I = Z^{0,9} \cdot 15 \text{ eV} \quad \text{soit} \quad I_{\text{Si}} = 164 \text{ eV}, \quad I_{\text{Ge}} = 339 \text{ eV}$$

En sommant de l'énergie zéro correspondant à l'arrêt total de la particule, à l'énergie E correspondant à son énergie initiale, on obtient le parcours R de la particule :

$$R = - \int_0^E \frac{dE}{dE/dx}$$

$$\text{comme} \quad E = \frac{1}{2} Mv^2 \quad \rightarrow \quad \frac{dE}{dv} = Mv$$

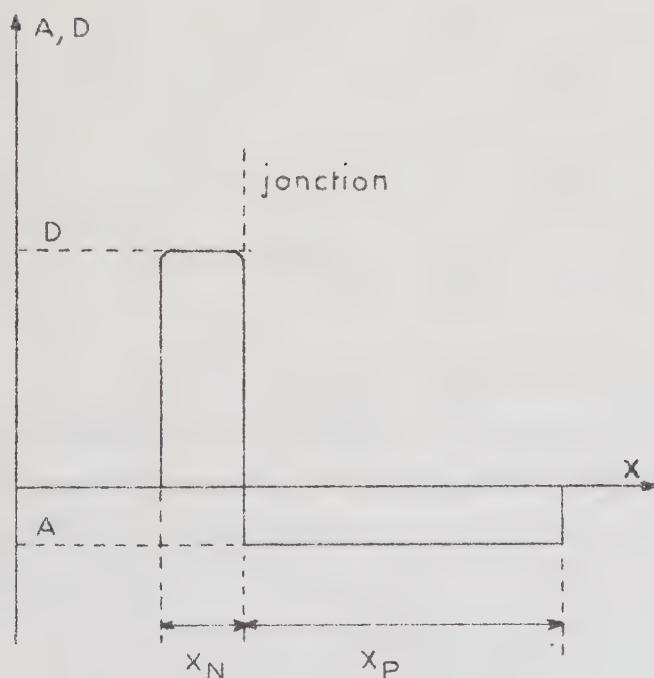
$$\text{c'est-à-dire} \quad dE = Mv \cdot dv$$

$$\text{donc} \quad R = \int_0^E \frac{dE}{dE/dx} = \int_0^{V_E} \frac{Mm v^3 dv}{4\pi e^4 z^2 ZN \text{Log} \frac{2mv^2}{I}}$$

$$R = \frac{Mn}{4\pi e^4 z^2 ZN} \int_0^{V_E} \frac{v^3 dv}{\text{Log} \frac{2mv^2}{I}}$$

Les inconvénients dus à l'absorption d'une partie de l'énergie des particules incidentes dans la fenêtre d'entrée des détecteurs peuvent être réduits en diminuant la profondeur de la zone non désertée. Il suffit pour ce faire, de déséquilibrer fortement les concentrations en impuretés A et D dans le semi-conducteur de base. En effet, les largeurs des zones désertées x_N et x_P dans les régions N et P sont liées aux concentrations D des atomes donneurs et A des atomes accepteurs pour la relation :

$$\frac{x_N}{x_P} = \frac{A}{D}$$



Ex. : pour $A \approx 10^{-7} D$

$$x_P \approx 10^7 x_N$$

Les techniques actuelles de fabrication permettent d'obtenir, avec du silicium de base P, obtenu par diffusion de phosphore, des fenêtres d'entrée d'une épaisseur de 0,5 à 0,7 μ .

La perte d'énergie dans une telle fenêtre est de l'ordre de 100 keV pour des rayons α de 5 MeV.

La diffusion du phosphore, enduit sur une des faces du cristal de silicium pur, se fait à 900 °C et permet d'obtenir des zones désertées de 700 μ .

La surface utile des détecteurs obtenus par les techniques de diffusion se limite à 2 ou 3 cm².

Une autre catégorie de détecteurs à semi-conducteur est utilisée de plus en plus par la spectrométrie des particules chargées : ce sont les détecteurs à barrière de surface.

Les détecteurs à barrière de surface sont obtenus par oxydation superficielle d'une plaquette de silicium du type N. Après l'oxydation, qui a pour but d'élaborer à la surface du silicium, une couche d'inversion, une métallisation à l'or est pratiquée par évaporation sous vide.

Dans les détecteurs à barrière de surface, la fenêtre d'entrée constituée par le film d'or a une épaisseur de l'ordre de 100 à 200 Å. La perte d'énergie dans une telle fenêtre, pour des rayons α de 5 MeV est de 15 à 20 keV, ce qui correspond à environ 0,1 μ de silicium.

L'autre avantage des détecteurs à barrière de surface, est la profondeur de la zone désertée qui peut être supérieure à 1500 μ . De plus, dans ces détecteurs, il est possible d'obtenir des surfaces utiles de plus de 10 cm², ce qui améliore dans de larges mesures, le rendement géométrique de détection.

- Profondeur de la zone désertée

Pour une bonne linéarité de réponse, il est nécessaire que la profondeur de la zone désertée du détecteur solide soit supérieure ou au moins égale au parcours de la particule chargée.

$(x_N + x_P)$ est proportionnel à $(\rho V_{\text{ext}})^{\frac{1}{2}}$

ρ est rarement supérieur à 20 000 Ω cm

D'autre part, l'augmentation de la tension extérieure V_{ext} est limitée par le danger de claquage entre les deux armatures formées par les zones non désertées N et P.

b) Résolution en temps

L'absorption de la particule chargée dans la zone désertée du détecteur libère au sein de celle-ci, des paires électron-trou. L'information électrique issue de cette ionisation, ne sera exacte, que si toutes les charges libérées sont collectées. Il faut que le temps de collection des charges t_C soit inférieur au temps de recombinaison des charges à l'intérieur de la chambre d'ionisation.

$$\text{Le temps de collection est } t_C = \frac{x_N - x_P}{\mu E}$$

$$\mu E = v$$

Pour que t_C soit petit, on peut diminuer la profondeur de la zone désertée $x_N - x_P$, mais alors, la chambre d'ionisation perd de son efficacité.

On peut aussi augmenter μ (mobilité des porteurs de charge), mais ceci revient à diminuer ρ (résistivité du cristal), ce qui est contraire aux exigences d'une bonne linéarité, $x_N - x_P$ étant proportionnel à $(\rho V)^{\frac{1}{2}}$

L'augmentation du champ $\vec{E}$ pour une profondeur de zone désertée donnée, exige, d'autre part, l'augmentation de la tension extérieure V_{ext} , ce qui évidemment multiplie les dangers de claquage à l'intérieur du détecteur.

Les causes de recombinaison des charges à l'intérieur de la zone désertée d'une jonction P. N. sont nombreuses ; un milieu cristallin, considéré comme très pur, contient toujours des centres ionisés, des trous dus à des défauts de structure ou à des impuretés chimiques. Les impuretés chimiques ajoutées en cours de fabrication, soit pour l'élaboration du matériau de type N ou P, soit accidentellement, apportent des irrégularités au réseau cristallin et constituent des défauts de réseau qui sont autant de "pièges à charges". Ces pièges modifient et abrègent les durées de vie des porteurs minoritaires utiles. Un électron ou un trou capté par un de ces pièges, ne contribue plus à la formation du signal électrique qui est l'unique information.

Les défauts de Frenkel sont causés par des déplacements d'atomes. Si, pour une cause quelconque, un atome est déplacé hors de sa position normale au noeud du réseau cristallin, deux défauts simultanés en résultent : une lacune au noeud originel abandonné par l'atome, et un atome interstitiel à l'endroit, autre qu'un noeud, où l'atome s'est réfugié.

Les défauts de Schottky, ne sont que des cas particuliers des défauts précédents : si un atome diffuse hors du réseau cristallin, il laisse une lacune à l'endroit de son habitus.

Les dislocations en arête, où un plan réticulaire est en surnombre, ou les dislocations en vis où certains plans ont des directions différentes des autres plans, figurent également parmi des pièges susceptibles de perturber la collection des porteurs de charge.

- Durée de vie ou temps de vie des porteurs de charge

Soient n et p les concentrations en électrons et en trous d'un semi-conducteur du type N et soit Δp_0 un accroissement de p dû à une cause quelconque.

La valeur $p + \Delta p_0$ va décroître rapidement par recombinaison des trous avec les charges négatives jusqu'à ce que l'équilibre soit de nouveau atteint, au temps t , l'excès de trous ne sera plus que :

$$\Delta p = \Delta p_0 e^{-\frac{t}{\tau_p}}$$

τ_p est appelé : durée de vie des trous,

$$\tau_p = \frac{1}{N_t \sigma_p v_p}$$

N_t étant la densité des pièges ou centres de recombinaison,

σ_p étant la section efficace de capture des trous par les charges négatives,

v_p étant la vitesse thermique de déplacement des trous dans le milieu considéré.

Temps de vie t_C et temps de collection τ , nous amènent à considérer le rendement de collection ou efficacité de collection η .

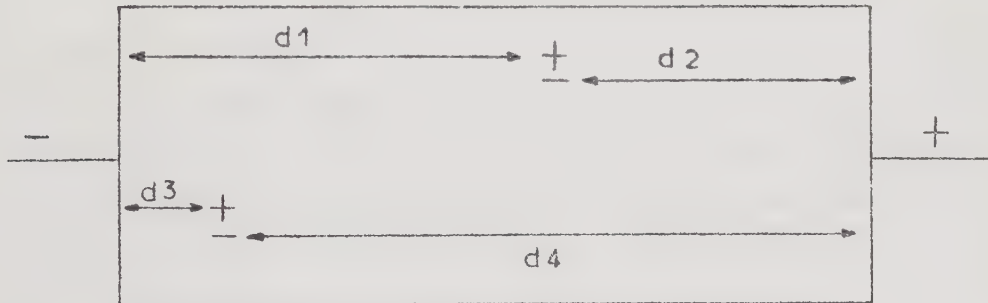
Si l'absorption de la particule chargée se fait entièrement dans la zone désertée du détecteur, la quantité d'électricité recueillie sera :

$$Q = \eta \frac{E}{e} e \quad \text{et non plus } \frac{E}{e} e$$

où $\eta < 1$

c) Résolution en énergie

La charge Q recueillie aux bornes du détecteur est faite de l'ensemble des charges positives et négatives collectées par les électrodes. Les centres de génération des paires électron-trou se situant sur la trajectoire de la particule chargée détectée, il est évident que les temps de collection des charges, seront fonction des distances séparant les lieux de naissance des électrodes de collection.



$$d_1 \neq d_2 \neq d_3 = d_4$$

L'établissement de la charge Q ne sera donc pas totale immédiatement, d'une part, parce que les distances d_1 , d_2 , d_3 et d_4 sont différentes les unes des autres, et d'autre part, parce que les mobilités des porteurs de charge sont nettement différentes.

Pour Si à 20°C,

$$\mu_n = 1300 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$$

$$\text{et } \mu_p = 500 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$$

L'élargissement des raies énergétiques dû aux différences de parcours et aux différences de mobilité des porteurs, se trouve encore augmenté par les bruits électroniques dus aux courants de diffusion de porteurs de charge, à partir des zones mortes du détecteur jusqu'à la zone désertée. Cette diffusion a pour cause l'agitation thermique, et est fonction de la résistivité du cristal et de la tension extérieure. Les autres causes d'élargissement des raies d'énergie sont : la génération thermique de porteurs positifs et négatifs dans la zone désertée, et les courants de fuite sur les surfaces du détecteur.

d) Rendement nucléaire

Le nombre N de paires électron-trou créés par l'absorption d'un rayon monoénergétique d'énergie E dans un matériau d'énergie d'excitation ϵ est susceptible de fluctuations car ϵ n'est qu'une valeur moyenne. Le nombre de porteurs créés devrait donc varier suivant une distribution de Poisson dont l'écart-type serait $\sqrt{N}$. Or, on constate qu'il n'en est pas ainsi et l'on trouve $\sigma = F\sqrt{N}$

F est le facteur de Fano qui a pour valeurs :

$$F_{Si} = 0,2$$

$$F_{Ge} = 0,3$$

3°) Valeur et forme de l'impulsion électrique fournie par le détecteur

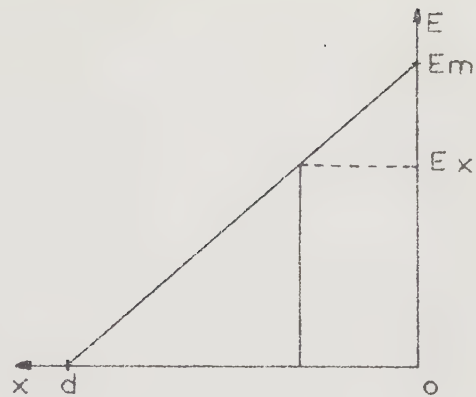
a) Champ électrique dans la zone désertée

Le champ électrique $\vec{E}$ dans une jonction PN est une fonction linéaire de la distance.

$$\frac{E_m}{d} = \frac{E(x)}{d-x}$$

or $E(x) = - \frac{dV}{dx}$

$$- \frac{dV}{dx} = E_m \left(1 - \frac{x}{d}\right)$$



$$- V = \int_0^d E_m \left(1 - \frac{x}{d}\right) dx = E_m x - E_m \frac{x^2}{2d}$$

et $V = E_m \frac{d}{2}$

$$E_m = \frac{2V}{d} \quad \text{et} \quad E(x) = \frac{2V}{d^2} (d - x)$$

b) Charge induite par un électron se déplaçant depuis son lieu de naissance x_0 jusqu'à l'électrode de collection +

- vitesse de l'électron dans le champ :

$$v_e = \frac{dx}{dt} = \mu_e E(x)$$

$$v_e = \mu_e \frac{2V}{d^2} (d - x)$$

Et nous aurons :

$$\frac{dx}{d-x} = \frac{2V \mu_e}{d^2} dt = \frac{1}{\tau_e} dt$$

$$\text{en posant } \frac{2V \mu_e}{d^2} = \frac{1}{\tau_e}$$

En intégrant,

$$\int \frac{dx}{d-x} = \int \frac{1}{\tau_e} dt$$

$$\frac{1}{-1} \text{Log} (d-x) = \frac{t}{\tau_e} - \text{Log} K$$

$$\text{pour } t = 0, \quad -\frac{t}{\tau_e} = 0 \quad \text{et} \quad x = x_0$$

$$\text{Log} (d-x) = -\frac{t}{\tau_e} + \text{Log} (d-x_0)$$

$$\text{et} \quad x = d + (x_0 - d) e^{-\frac{t}{\tau_e}}$$

- la charge induite par un électron sur l'électrode étant proportionnelle à la distance parcourue, de x_0 à x , l'électron induit donc :

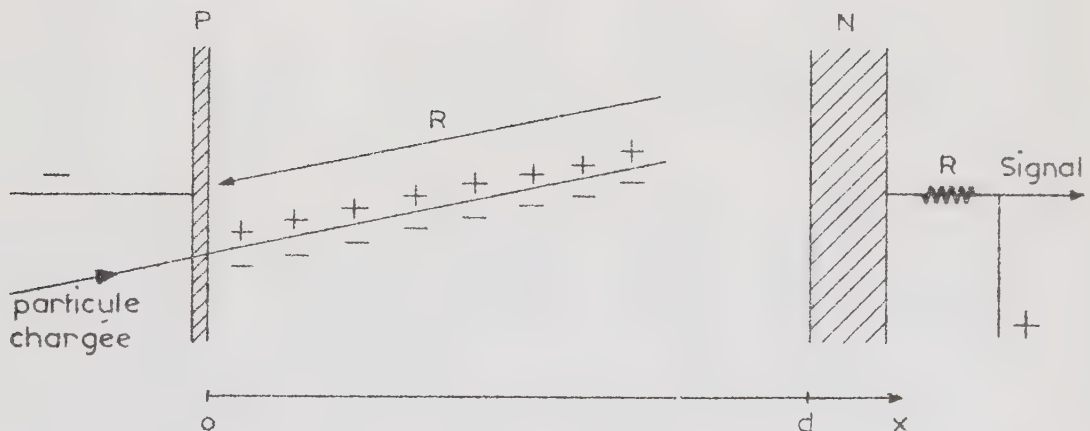
$$\Delta Q_e = q \frac{x - x_0}{d}$$

Soit avec la valeur de x trouvée plus haut :

$$\Delta Q_e = q \frac{d + (x_0 - d) e^{-\frac{t}{\tau}} - x_0}{d}$$

$$\Delta Q_e = q \frac{d - x_0}{d} \left[1 - e^{-\frac{t}{\tau}} \right]$$

c) Nombre de paires électron-trou créés par une particule chargée, le long de sa trajectoire d'absorption



Une particule chargée, d'énergie E , perd, le long de sa trajectoire sur le parcours dx_0 dans la matière absorbante, une énergie dE . Si ϵ est l'énergie moyenne nécessaire à la création d'une paire électron-trou ($\epsilon = 3,61$ eV dans le silicium) alors, le nombre d'électrons est :

$$N_e = \frac{dE}{\epsilon}$$

$$\text{c'est-à-dire} \quad \frac{dE}{\epsilon} = \frac{1}{\epsilon} \frac{dE}{dx} dx_0 \quad (dx_0 = dx = C^{te})$$

La particule chargée étant entièrement absorbée le long d'un parcours R,

$$R = \frac{Mm}{4\pi q^4 z^2 ZN} \int_0^{V_E} \frac{v^3}{\text{Log} \frac{2mv^2}{I}} \quad (\text{cf page } \quad)$$

La charge induite par tous les électrons est :

$$\Sigma \Delta Q_e = \Delta Q_e \cdot N_e$$

c'est-à-dire, en intégrant de 0 à R sur la trajectoire :

$$\Sigma \Delta Q_e = q \frac{1}{\epsilon} \frac{dE}{dx} \left[1 - e^{-\frac{t}{\tau_e}} \right] \int_0^R \left[1 - \frac{x_0}{d} \right] dx_0$$

$$= q \frac{1}{\epsilon} \frac{dE}{dx} \left[1 - e^{-\frac{t}{\tau_e}} \right] \left| x - \frac{x^2}{2d} \right|_0^R$$

$$\Sigma \Delta Q_e = K Q_T \left[1 - e^{-\frac{t}{\tau_e}} \right] \quad \text{avec } K = 1 - \frac{R}{2d}$$

$$Q_T = q \frac{1}{2} \frac{dE}{dx} R \quad \text{est}$$

la charge totale libérée par la particule dans la jonction.

Un calcul analogue nous donnerait l'expression de la charge induite par les trous positifs et l'on aurait :

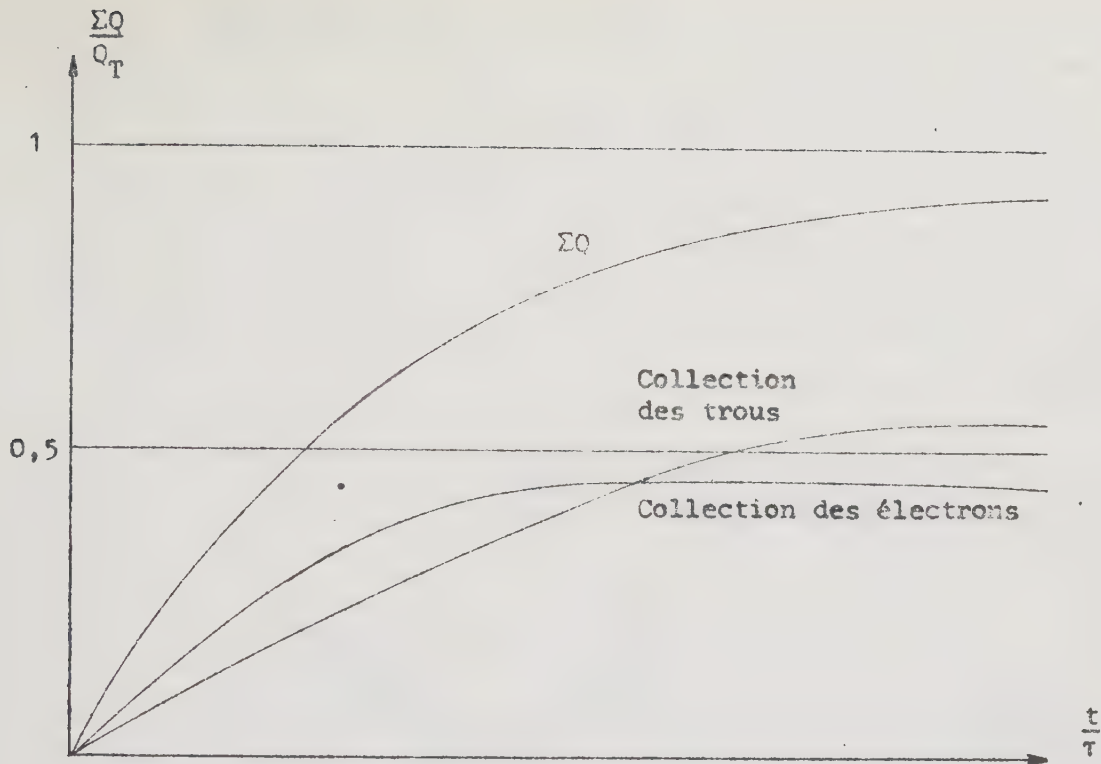
$$\Sigma \Delta Q_t = \frac{1}{2} Q_T \left[K' \left[1 - e^{-\frac{t}{\tau_t}} \right] + 1 - e^{-\frac{t}{\tau_t}} \right]$$

$$\text{avec } K' = \left(1 - \frac{R}{d} \right)^2$$

Ces expressions nous donnent l'allure des charges collectées en fonction du temps écoulé depuis la naissance des porteurs de charges. Dans ces calculs, nous avons considéré le coefficient d'absorption linéaire $\frac{dE}{dx}$ comme constant, mais en fait, ce coefficient varie légèrement au cours des processus d'absorption de la particule chargée dans la matière, d'une part, parce que la vitesse de la particule diminue et d'autre part, à cause des défauts cristallins du détecteur.

Les courbes représentatives de $\Sigma Q/Q_T$ f $\left(\frac{t}{\tau} \right)$ des collections d'électrons et de trous ainsi que la somme de ces charges sont représentées sur le schéma ci-dessous pour $R = d$.

Pour des valeurs de $\frac{R}{d}$ inférieures à 1, la courbe de collection des électrons se déplace vers le haut et atteint plus rapidement une valeur voisine de la courbe "somme" alors que celle des "trous" se rapproche de l'axe des abscisses.



4°) L'impulsion de tension

La charge Q créée dans le détecteur par la particule chargée d'énergie E , développe aux bornes du condensateur de capacité C qu'est le détecteur, une tension électrique V de valeur :

$$V = \frac{Q}{C} = \frac{E}{\epsilon} q \frac{1}{C}$$

Cette tension est donc proportionnelle à l'énergie de la particule.

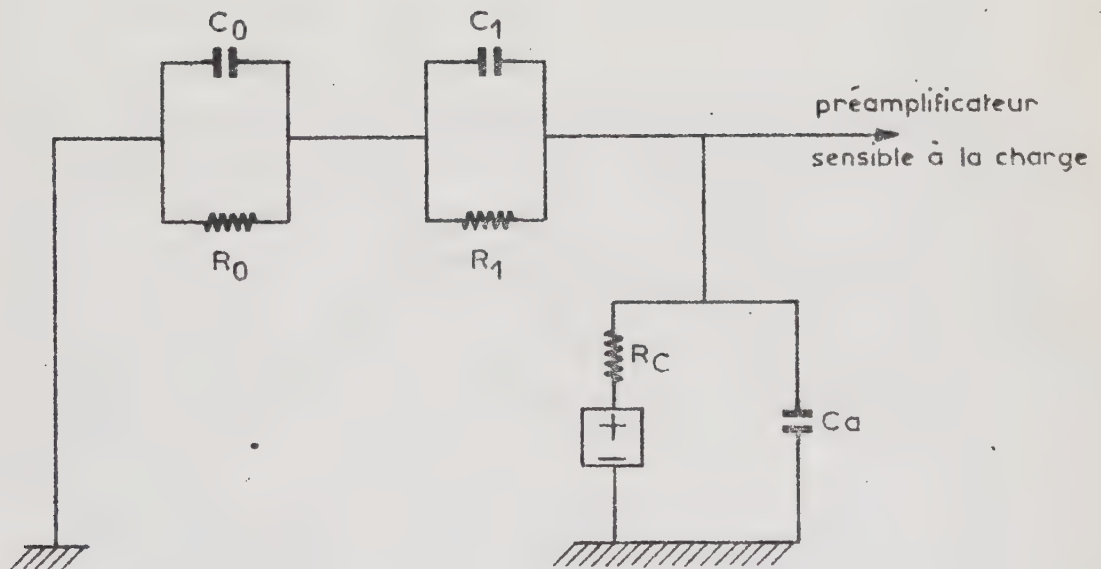
Pour obtenir l'impulsion de tension utilisable à l'entrée du pré-amplificateur sensible à la charge, il suffit de polariser le détecteur au travers d'une résistance de charge R_C de grande valeur.

L'expression de l'impulsion de tension en fonction du temps est obtenue en considérant le schéma équivalent électrique formé par les divers éléments qui constituent le détecteur et ses circuits de mise en oeuvre.

Soient donc : a) R_0 et C_0 , les résistance et capacité de la chambre d'ionisation solide qu'est la zone désertée du cristal détecteur,

b) R_1 et C_1 , les résistance et capacité des zones insensibles que sont les zones non désertées du cristal détecteur et des résistances de contact. L'ensemble R_1 C_1 est en série avec l'ensemble R_0 C_0 .

c) R_C et C_a , les résistance de charge et capacité d'entrée du préamplificateur.



La tension à l'entrée du préamplificateur sera : (cf. Richard P., D.E.S., Nancy, 1967)

$$V(t) = \frac{Q}{C} \left[e^{-\frac{t}{\tau_0}} - e^{-\frac{t}{\tau_1}} \right]$$

$$C = C_0 + C_a$$

Constante de temps de montée $\tau_0 = R_0 (C_0 + C_a)$

Constante de temps de descente $\tau_1 = R_1 C_0 C_a / (C_0 + C_a)$

CHAPITRE IV

APPLICATIONS ET RESULTATS

I - ECHANTILLON -SOURCE

La préparation des échantillons sources, est un des points les plus délicats de la spectrométrie α . Le rayonnement α étant un rayonnement de particules chargées lourdes, est très ionisant ; son parcours dans la matière est donc toujours très réduit et de l'ordre de quelques micromètres. On peut considérer comme source épaisse, toute source dont l'épaisseur est supérieure ou égale au parcours R du rayonnement le moins énergétique de la collection de radioisotopes contenue dans l'échantillon. Pour le cas des minéraux de l'uranium, objets de cette étude, le rayonnement le plus faible est celui de l'isotope 238 de l'uranium dont l'énergie est 4,18 MeV et ce rayonnement est entièrement absorbé par une épaisseur de 10 à 20 micromètres. Les sources épaisses ne permettent donc pas de faire une spectrométrie utilisable dans la détermination des activités des radioisotopes de la famille de l'uranium-radium, détermination qui permet l'étude de l'équilibre radioactif.

Notre souci majeur, dans ce travail, a été de fournir aux géologues, des informations issues des minéraux et non des informations issues de la somme plus ou moins complète d'éléments traités chimiquement.

Il existe plusieurs méthodes d'élaboration de couches très minces présentant toutes les qualités requises pour la spectrométrie du rayonnement α , mais toutes ces méthodes détruisent le minéral et il est permis

de penser que certains éléments constitutifs peuvent manquer dans les produits finaux. Ces procédés sont :

1°) La projection ou pulvérisation électrostatique

Cette méthode demande la mise en solution totale de l'échantillon.

2°) Le dépôt par électrolyse qui demande une chimie préparatoire importante et qui ne peut pas garantir le dépôt de tous les éléments, les potentiels de dépôt étant différents pour chaque élément.

3°) La vaporisation sous vide difficilement applicable dans le cas des minéraux.

Nous avons donc utilisé les sources suivantes, qui permettent de conserver aux échantillons, leur entité minéralogique.

4°) Les frottis

Les minéraux uranifères, après triage sous une loupe binoculaire, sont porphyrisés au mortier d'agate et déposés sur des lames de verre légèrement dépolies ou sur une membrane de mylar (téréphtolate de polyéthylène : $C_{19} H_{16} O_7$).

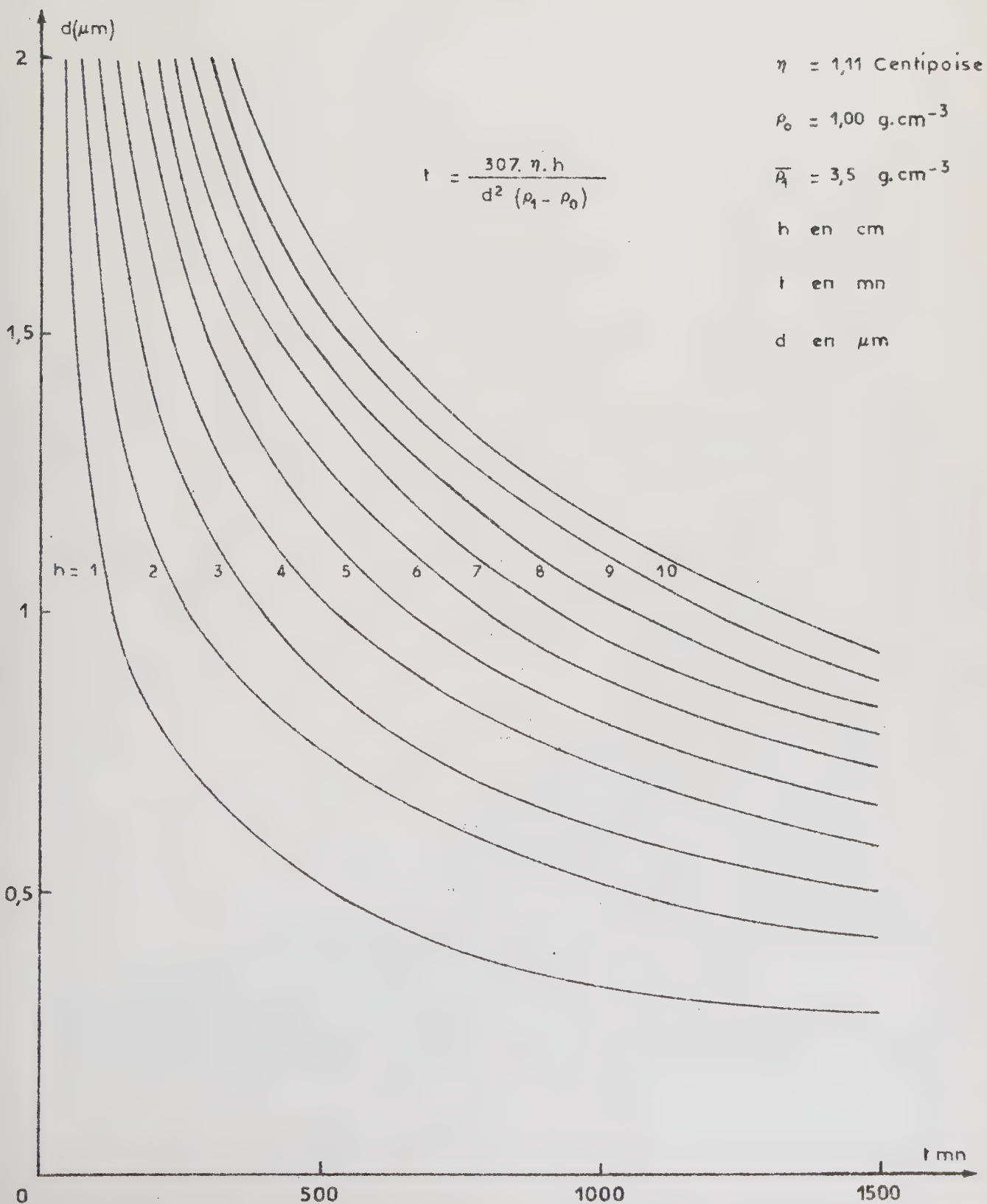
5°) Les dépôts sédimentés

Les produits de la porphyrisation sont mis en suspension dans de l'eau bidistillée et la fraction granulométrique de 0,5 à 2 microns est prélevée suivant les temps donnés par la formule de Stokes :

$$t = \left[\frac{307 \eta h}{d^2 (\rho_1 - \rho_0)} \right]^{\frac{1}{2}}$$

MINÉRAUX $\bar{\rho}$ URANIUM PRINCIPALEMENT HEXAVALENT

$$\bar{\rho}_1 = 3,5 \text{ g cm}^{-3}$$



PECHBLENDES et OXYDES NOIRS $\bar{\rho}_1 = 7 \text{ gm}^{-3}$

$\eta = 1,11 \text{ Centipoise}$

$\rho_0 = 1,00 \text{ g cm}^{-3}$

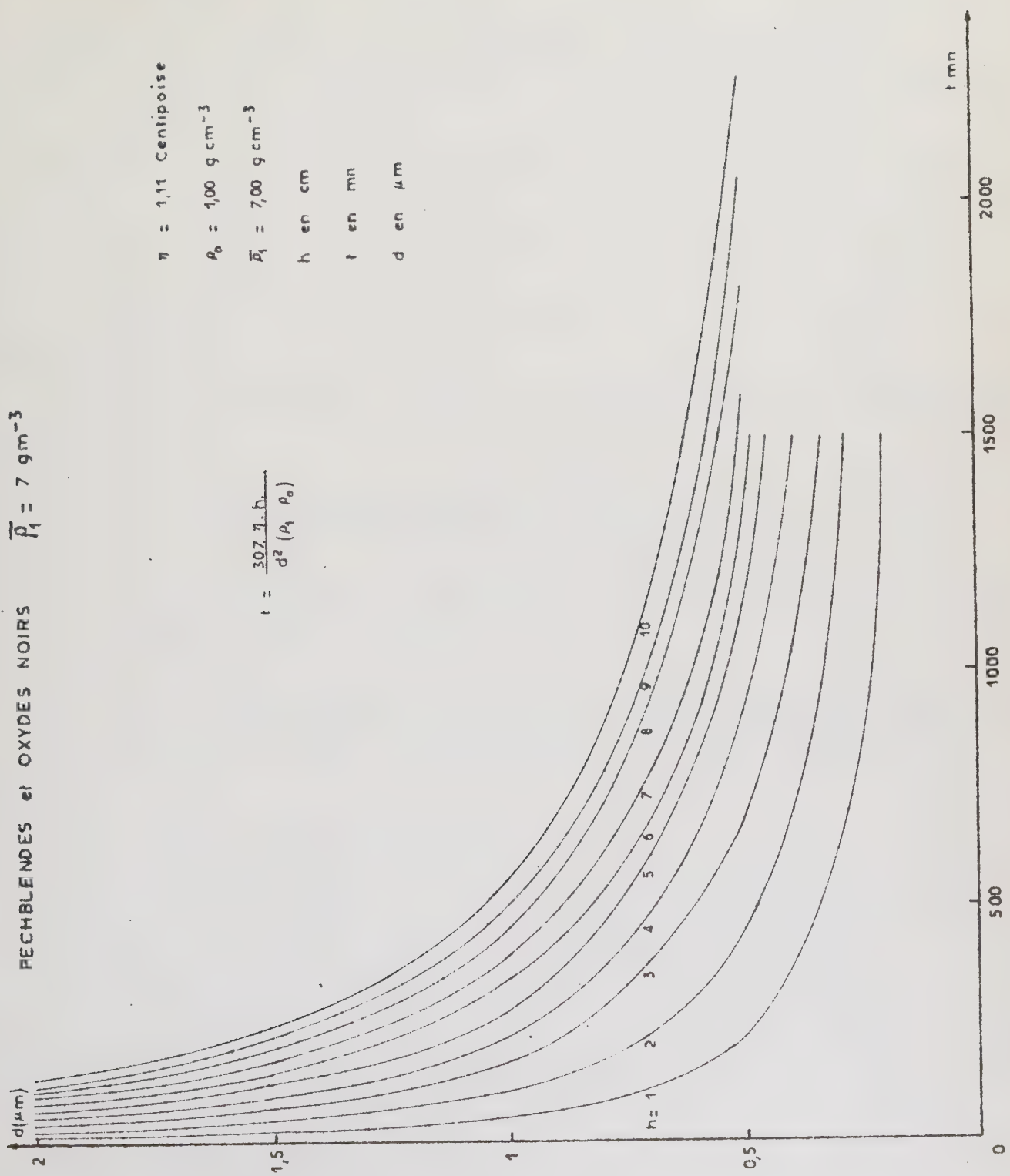
$\bar{\rho}_1 = 7,00 \text{ g cm}^{-3}$

$h \text{ en cm}$

$t \text{ en mn}$

$d \text{ en } \mu\text{m}$

$$t = \frac{307 \cdot \eta \cdot h}{d^2 (\rho_1 \rho_0)}$$



dans laquelle :

η est la viscosité en centipoises du fluide,

h la hauteur en centimètres au-dessous du niveau de la surface,

d le diamètre en μm des particules solides en suspension,

ρ_1 & ρ_0 respectivement, les densités en g cm^{-3} des solide et fluide,

t le temps en minutes.

Le dépôt se fait encore par évaporation sur une membrane de mylar.

II - Spectre des émissions α d'une source épaisse

Soit une couche émettrice α placée en regard d'un détecteur circulaire à barrière de surface.

Dans l'épaisseur de la source, considérons un volume élémentaire dv situé à la distance ρ de l'origine O , d'un élément de détecteur ds :

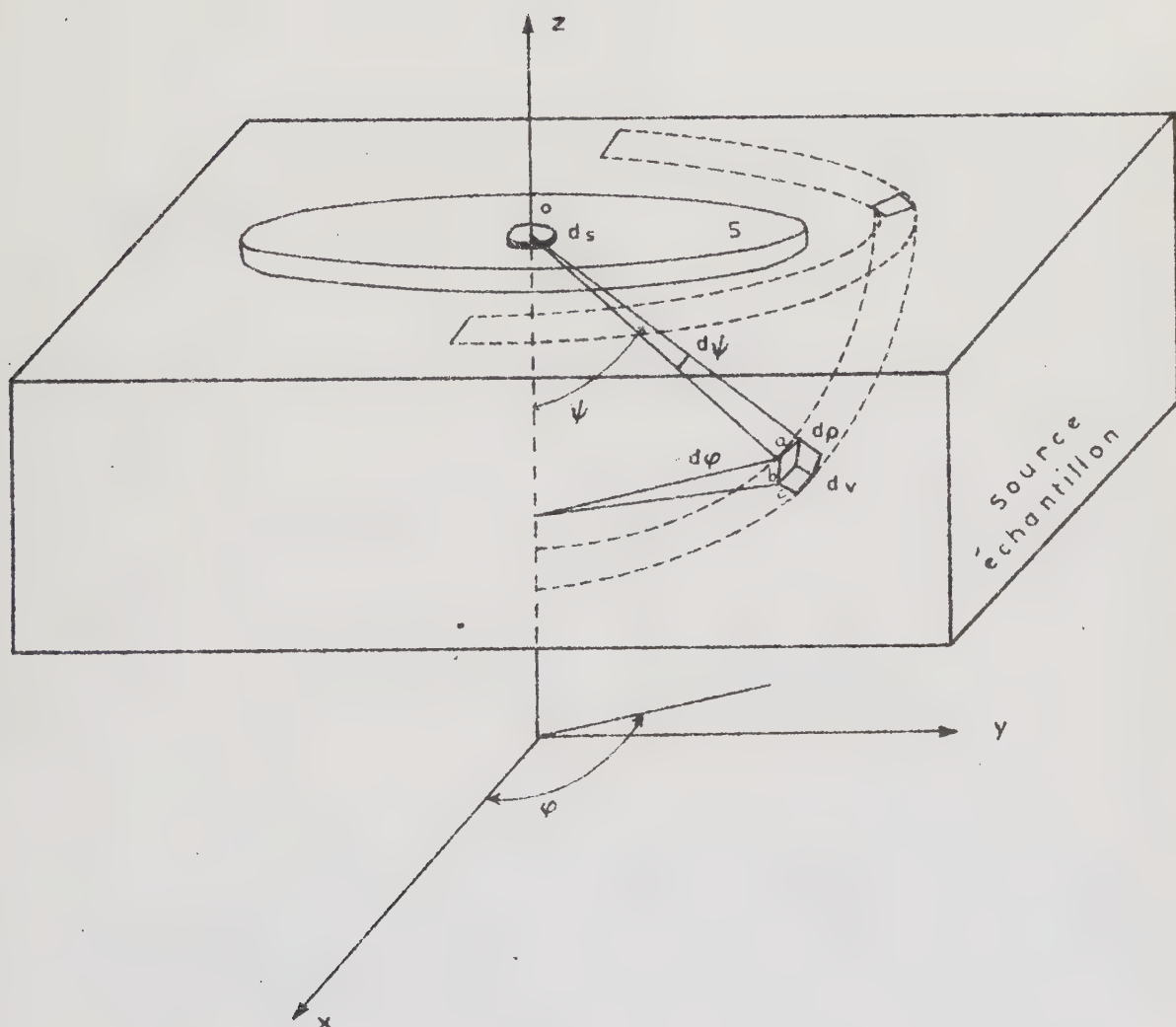
$$dv = a \cdot b \cdot c.$$

$$a = \rho \, d\psi$$

$$b = \rho \sin \psi \, d\varphi$$

$$c = d\rho$$

$$dv = \rho^2 \sin \psi \, d\psi \, d\varphi \, d\rho$$



Si A_0 est l'activité spécifique alpha du minéral constituant la source en $\alpha \cdot \text{cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$ dans l'angle solide total de 4π Stéradians, le volume élémentaire dv émettra en direction de l'élément de détecteur de surface ds , un nombre de rayons α égal à :

$$dA = \frac{A_0 ds \cos \psi}{4\pi \rho^2} dv$$

L'angle solide du point M du volume élémentaire de la source par rapport à l'élément ds étant :

$$d\Omega_M = \int \int_S \frac{ds \cos \psi}{\rho^2}$$

et le nombre de rayons alpha émis par dv en direction de ds est

$$dA = \frac{A_0 ds}{4\pi \rho^2} \rho^2 \cos \psi \sin \psi d\varphi d\rho$$

Si alors, nous considérons une coquille sphérique de rayon ρ et d'épaisseur $d\rho$ émettant des rayons α d'énergie E , nous obtenons le nombre de rayons α arrivant sur le détecteur S avec les énergies réduites, par l'autoabsorption, $E_{(\rho)}$ et $E_{(\rho + d\rho)}$

$$dA = \frac{A_0}{4\pi} \int_0^S ds \int_{\rho}^{\rho+d\rho} d\rho \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\frac{\pi}{2}} \sin \psi \cos \psi d\psi$$

en intégrant :

$$a) \quad s \Big|_0^s = s$$

$$b) \quad \rho \Big|_{\rho}^{\rho+d\rho} = d\rho$$

$$c) \quad \varphi \Big|_0^{2\pi} = 2\pi$$

$$d) \quad \frac{1}{2} \sin^2 \psi \Big|_0^{\frac{\pi}{2}} = \frac{1}{2}$$

donc :

$$A = \frac{A_0}{4\pi} s \cdot 2\pi \cdot \frac{1}{2} d\rho = \frac{A_0 s}{4} d\rho$$

Appelons ce nombre dN , et considérons le en fonction des énergies, nous obtenons l'expression du spectre des α :

$$\frac{dN}{dE} = \frac{A_0 s}{4} \frac{d\rho}{dE}$$

c'est-à-dire,

$$\frac{dN}{dE} = \frac{A_0 s}{4} \left[\frac{dE}{d\rho} \right]^{-1}$$

$\frac{dE}{d\rho}$ représente ainsi la perte d'énergie par unité de longueur sur la trajectoire ρ de l' α entre son lieu de naissance et son point d'impact dans le détecteur, c'est donc le pouvoir d'arrêt linéaire que l'on désigne par $\frac{dE}{dx}$.

L'intensité du spectre est donc une fonction inverse du pouvoir d'arrêt, de l'autoabsorption, de la source émettrice.

Dans les minéraux de l'uranium, les émetteurs alpha sont nombreux ; ce sont :

$$U_I, U_{II}, \quad I_O, Ra, Rn, RaA, RaC', RaF.$$

Ces émetteurs possèdent, d'une part, des énergies différentes qui permettent leur identification et d'autre part, des activités spécifiques différentes :

$$A_{U_I}, A_{U_{II}}, A_{Ra}, A_{Rn} \dots A_{RaF}$$

L'expression du spectre se complique et devient :

$$\left[\frac{dN}{dE} \right]_{U.total} = \frac{A_O(U_I) S}{4} \left[\frac{dE}{dx} \text{ (de 0 à 4,18 MeV)} \right]^{-1} + \frac{A_O(Ra) S}{4} \left[\frac{dE}{dx} \text{ (0 à 4,795 MeV)} \right]^{-1} + \dots + \frac{A_O(RaC') S}{4} \left[\frac{dE}{dx} \text{ (0 à 7,68 MeV)} \right]^{-1}$$

Dans l'exemple ci-dessus, nous avons considéré le détecteur

placé sur la surface de l'échantillon-source ; en réalité, dans l'installation que nous possédons, l'ensemble source-détecteur est placé dans une chambre à vide où règne une pression résiduelle d'air de $5 \cdot 10^{-2}$ à 10^{-3} millimètres de mercure et la source est distante de quelques millimètres à quelques centimètres du détecteur. Il faut donc, dans un calcul rigoureux du spectre, tenir compte de l'absorption par la couche résiduelle gazeuse se trouvant en écran entre la source et le détecteur. Le pouvoir d'arrêt de cette couche est négligeable auprès de celui de la source ; nous indiquerons néanmoins, un exemple de calcul se rapportant au cas où un tel écran existe.

Choisissons à cet effet un point émetteur I dans une situation privilégiée, c'est-à-dire situé en un endroit de l'ensemble source-écran-détecteur où l'absorption totale est la moins complexe ; ce point, pour un émetteur solide de la famille uranium-radium, ne peut être situé qu'à l'interface source-gaz résiduel ; dans le cas du radon, il peut évidemment se trouver dans toute situation, dans le gaz résiduel et soit dI, un volume élémentaire autour de ce point. Pour atteindre le détecteur, un rayon α issu de dI traverse une épaisseur égale à ρ_e et, quel que soit le rapport du pouvoir d'arrêt de l'écran $\left[\frac{dE}{dx}\right]_{\text{écran}}$ au pouvoir d'arrêt de l'échantillon-source $\left[\frac{dE}{dx}\right]_{\text{source}}$, il est possible de définir un ensemble d'épaisseurs composées "écran + source" équivalentes à la distance ρ_e quant à l'absorption d'un rayonnement α d'énergie E_e . L'ensemble de ces épaisseurs équivalentes ρ détermine une surface non sphérique, un lieu, d'où tout rayon α peut atteindre le détecteur avec une énergie E_ρ .

Pour un autre ensemble d'épaisseurs composées de rayons $\rho_1 + d\rho_1$, il existe une autre surface non sphérique émettant sur le détecteur des énergies résiduelles E_{ρ_1} .

Ces deux surfaces limitent une coquille non sphérique émettant sur le détecteur des rayons α dont les énergies résiduelles sont comprises entre E_ρ et E_{ρ_1} . Si A_0 est encore l'activité spécifique en $\alpha \cdot \text{cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$ de la

source et d'un élément dv , le nombre de particules issues de la coquille et atteignant le détecteur sera :

$$dA = \frac{A_0}{4\pi} \int_0^S ds \int_{\rho(\psi)}^{\rho(\psi)+d\rho} d\rho \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\psi_e} \cos \psi \sin \psi d\psi$$

En intégrant, on obtient :

$$a) \quad ds \Big|_0^S = S$$

$$b) \quad \rho \Big|_{\rho(\psi)}^{\rho(\psi)+d\rho} = d\rho$$

$$c) \quad \varphi \Big|_0^{2\pi} = 2\pi$$

$$d) \quad \frac{1}{2} \sin^2 \psi \Big|_0^{\psi_e} = \frac{1}{2} \sin^2 \psi_e$$

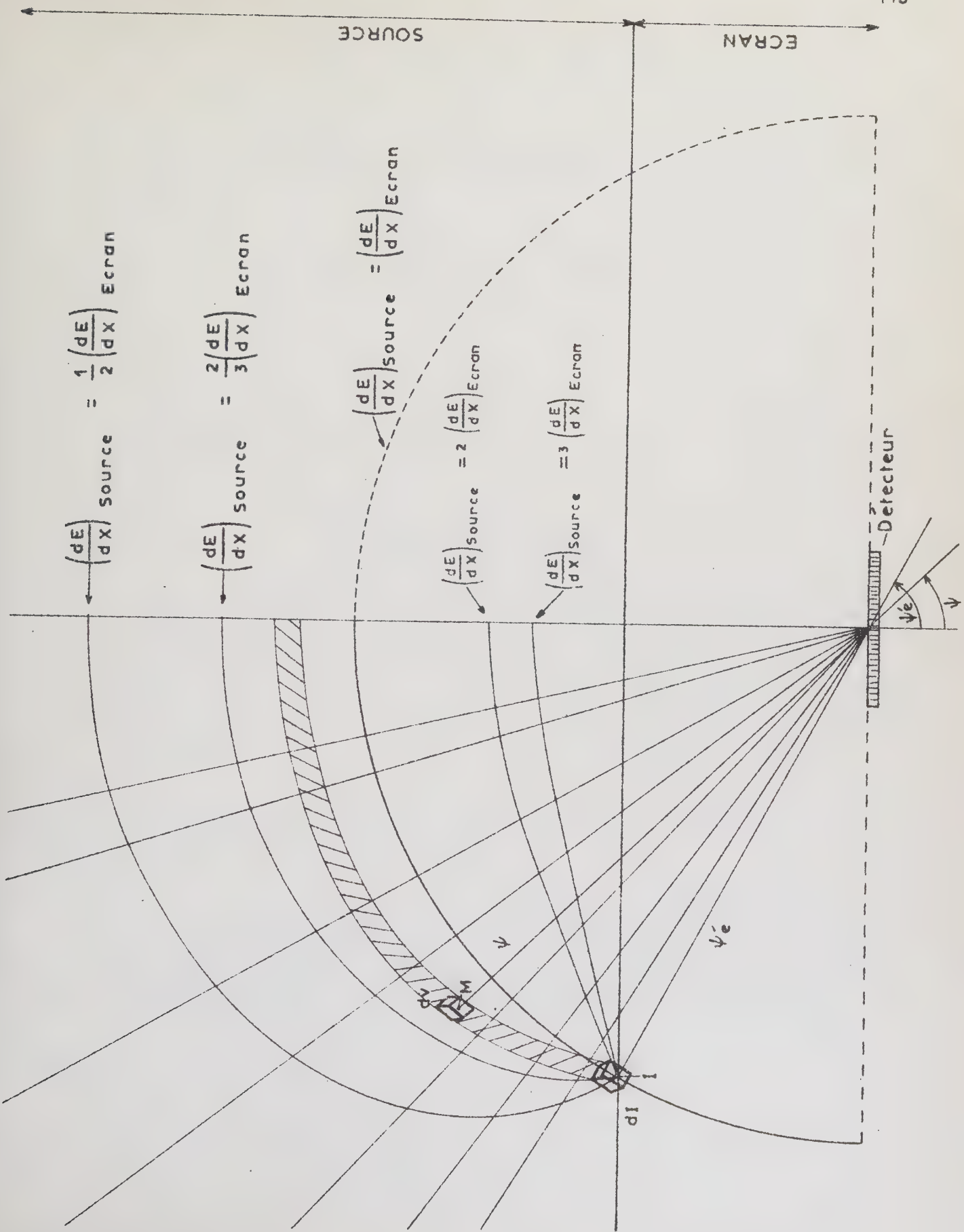
$$\cos \psi_e = \frac{e}{\rho_e}$$

$$\sin^2 \psi_e = 1 - \frac{e^2}{\rho_e^2}$$

donc

$$A = \frac{A_0 \cdot S}{4} \left[1 - \frac{e^2}{\rho_e^2} \right] d\rho$$

et l'expression du spectre est : avec $\frac{dA}{dE} = \frac{dN}{dE}$



$$\begin{aligned}\frac{dN}{dE} &= \frac{A_0 S}{4} \left[1 - \frac{e^2}{\rho_e^2} \right] \frac{d\rho}{dE} \\ &= \frac{A_0 S}{4} \left[1 - \frac{e^2}{\rho_e^2} \right] \left[\frac{dE}{d\rho} \right]^{-1} \\ \frac{dN}{dE} &= \frac{A_0 S}{4} \left[1 - \frac{e^2}{\rho_e^2} \right] \left[\frac{dE}{dx} \right]_{\text{source}}^{-1}\end{aligned}$$

III - INSTALLATION SPECTROMETRIQUE

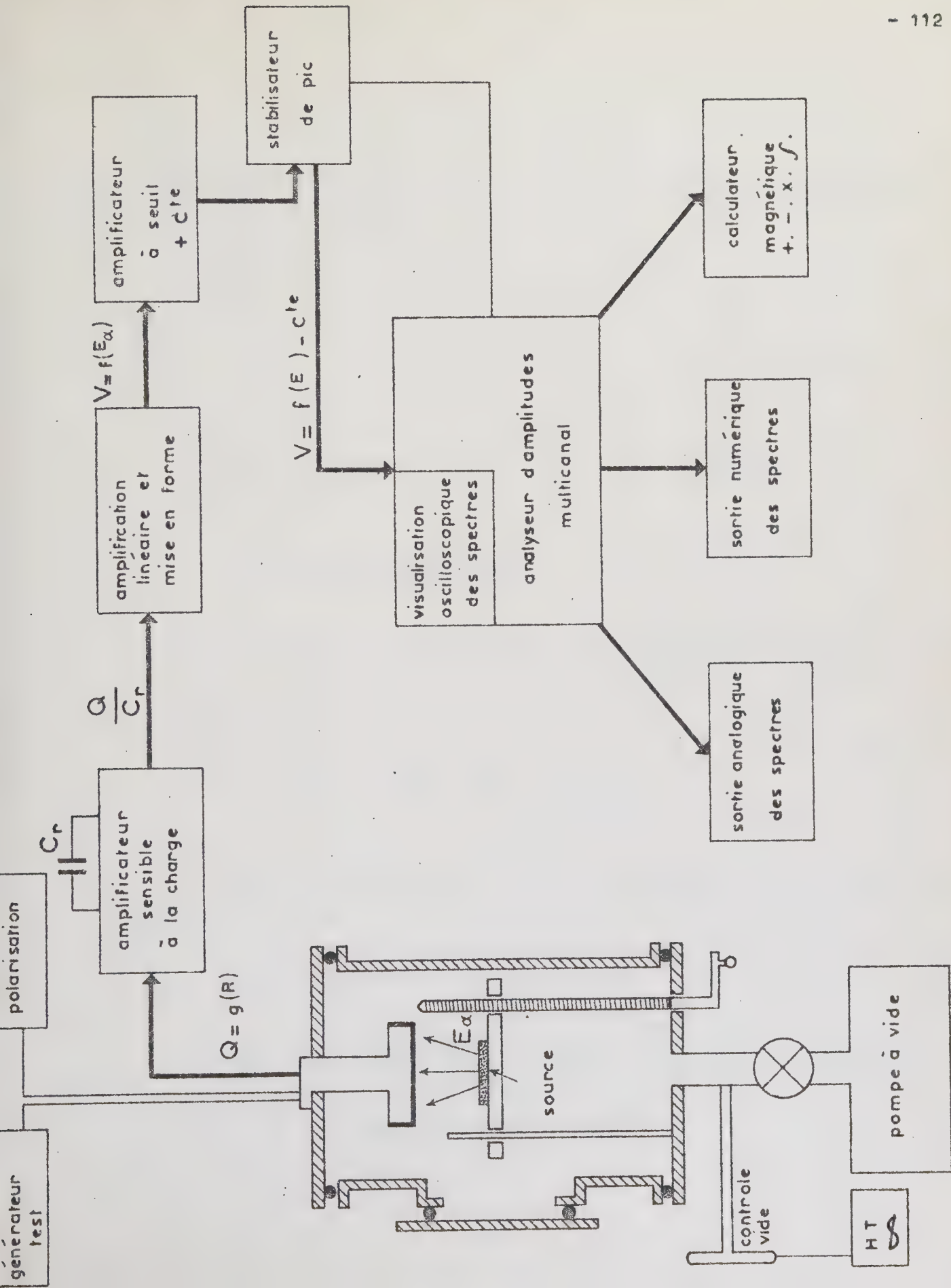
1°) Chambre à vide

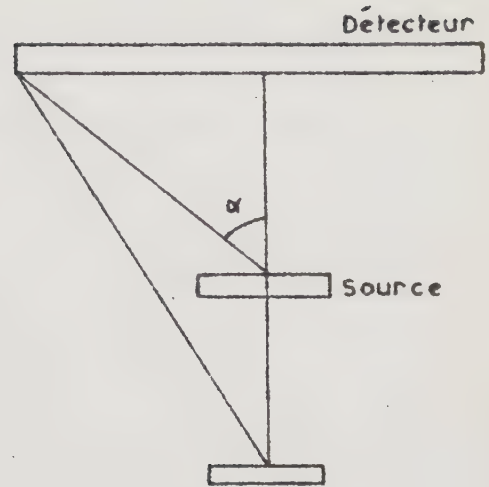
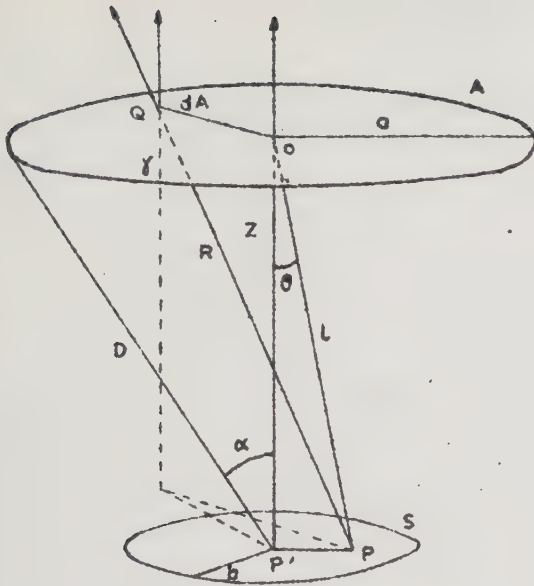
- Distance source-détecteur

Afin de réduire l'absorption du rayonnement alpha entre la source-émettrice et le détecteur de rayonnement, l'ensemble échantillon-source-détecteur à semi-conducteur (type à barrière de surface ou à jonction P.N.) est placé à l'intérieur d'une enceinte à vide cylindrique où la pression d'air est réduite par un groupe de pompage à une pression résiduelle de l'ordre de 5.10^{-2} à 1.10^{-3} millimètres de mercure.

La bonne qualité du vide est contrôlable à l'aide d'un tube d'ionisation à décharge électrique.

L'échantillon-source repose sur un plateau porte-source dont la distance au détecteur, fixe, est réglable de l'extérieur et mesurable sur un disque gradué. Ce dispositif permet d'obtenir le rendement géométrique optimum par variation de l'angle solide Ω_s source-détecteur.





Nous avons, pour le point p'

$$\Omega_{p'} = 2 \pi (1 - \cos \alpha) = 2 \pi \left[\frac{a^2}{D(D+Z)} \right] \text{ stéradians}$$

et la géométrie :

$$G_{p'} = \frac{\Omega_{p'}}{4 \pi} = \frac{1}{2} \left[\frac{a^2}{D(D+Z)} \right]$$

Pour tout autre point P, nous pouvons utiliser les approximations suivantes :

a) pour $\frac{\rho}{D} < 1$ ($\rho < D$)

$$G_P = G_{p'} - \frac{3}{8} \rho^2 \frac{a^2 Z}{D^5} + \frac{15}{32} \rho^4 \frac{a^2 Z}{D^9} \left[Z^2 - \frac{3}{4} a^2 \right] + \dots$$

$$\text{avec } D = (a^2 + Z^2)^{\frac{1}{2}}$$

b) pour toute la source :

si I_P est l'intensité relative au point P,

I_S l'intensité totale de la source :

$$I_S = \pi b^2 I_P$$

$$\text{alors } G_S = \frac{2}{b^2} \int_0^b G_P \rho d\rho$$

Pour $\frac{\rho}{D}$ ou $\frac{b}{D}$ petits :

$$G_P = G_{P'} \left\{ 1 - \frac{3}{4} \rho^2 \left[\frac{Z(Z+D)}{D^4} \right] \right\}$$

$$\text{et } G_S = G_{P'} \left\{ 1 - \frac{3}{8} b^2 \left[\frac{Z(Z+D)}{D^4} \right] \right\}$$

$$\text{Pour } \frac{a}{l} \text{ petit : } G_{P'} = \frac{1}{4} \frac{a^2}{Z^2}$$

$$\text{et } G_P = \frac{1}{4} \frac{a^2}{l^2} \cos \theta = \frac{1}{4} \frac{a^2}{Z^2} \cos^3 \theta$$

2°) - Préamplificateur sensible à la charge

Il comporte, en plus de l'amplificateur sensible à la charge proprement dit, la résistance du circuit de polarisation du détecteur et le condensateur d'injection des impulsions électriques d'étalonnages par le générateur "test".

L'amplificateur de charge est du type à "faible bruit électro-nique" (≤ 5 keV pour une gamme d'énergie de 0,1 à 10 MeV). Sa sensibilité est de $220 \text{ mV} \cdot \text{MeV}^{-1}$ - soit 1,1 volt pour une résistance de 100Ω (en sortie) pour 5 MeV;

Sa variation de gain pour une capacité à l'entrée de 100 pF, est de l'ordre de - 6 %, avec une constante de temps de 10^{-5} s ; il est équipé en son étage d'entrée d'un transistor à effet de champ.

La charge fournie par le détecteur étant :

$$Q = \frac{E}{\epsilon} e \rightarrow \frac{10^6}{3,6} \quad 1,6 \cdot 10^{-19} = 0,044 \cdot 10^{-12} \text{ C.MeV}^{-1}$$

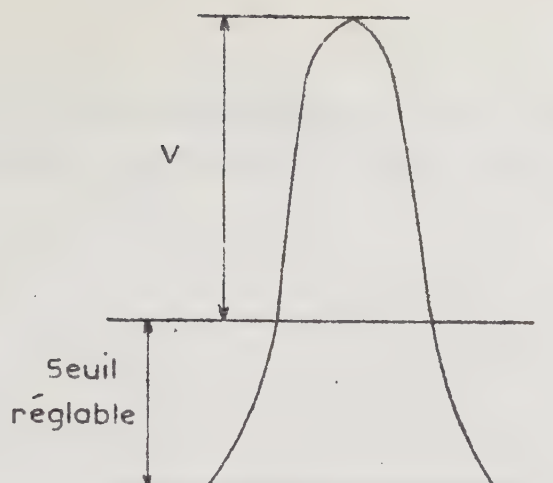
La capacité équivalente du préamplificateur est donc :

$$\begin{aligned} C_{\text{eq}} &= \frac{Q}{V_S} = \frac{10 \cdot 0,044 \cdot 10^{-12}}{2,2} = 0,2 \cdot 10^{-12} \text{ F} \\ &= 0,2 \text{ pF} \end{aligned}$$

Pour l'étalonnage, la capacité d'injection est de 4,7 pF (ajustable de 0 à 6 pF) ; elle fournit ainsi, pour l'équivalence de 1 MeV, une impulsion de :

$$V_E = \frac{Q}{C} = \frac{0,044 \cdot 10^{-12}}{4,7 \cdot 10^{-12}} = 9,5 \text{ mV} \cdot \text{MeV}^{-1}$$

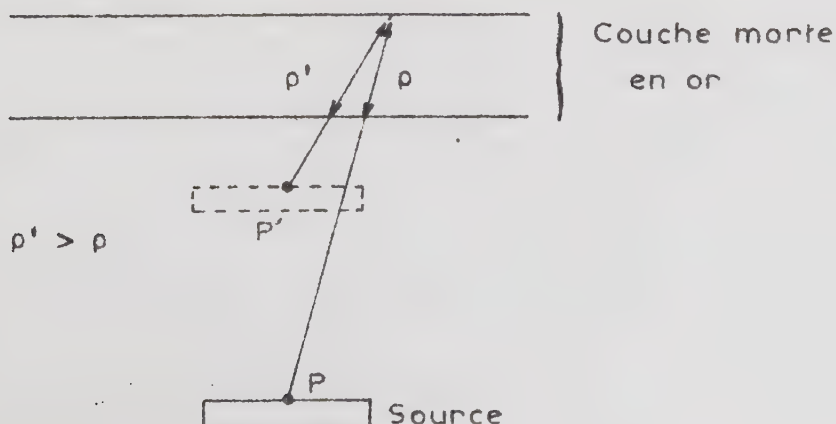
Les informations issues de l'amplificateur de charge sont ensuite transmises à un adaptateur d'impédance, puis à l'amplificateur linéaire et de mise en forme et conditionnées du point du niveau par un amplificateur à seuil, et enfin triées par un analyseur d'amplitudes multicanal.



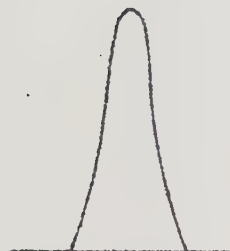
Les analyses sont relativement longues, de 24 à 48 heures. En cours d'analyse, l'accumulation du spectre stocké dans une mémoire magnétique peut être visualisée sur un écran oscilloscopique, ce qui permet de suivre la bonne marche de l'opération et de remédier en cas d'anomalies, aux défauts dus à :

- la mauvaise qualité de l'échantillon-source. Si la source est trop épaisse, l'autoabsorption est si importante que les pics du spectre de raies disparaissent, noyés.

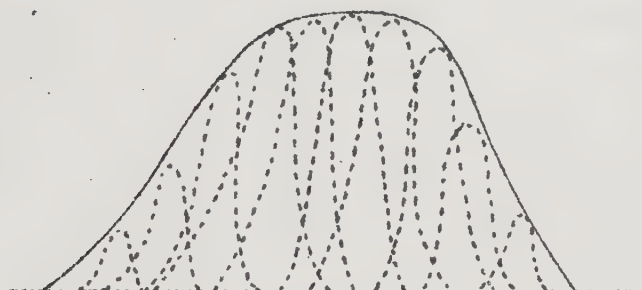
- la mauvaise géométrie. Les pics s'élargissent par augmentation de l'atténuation du rayonnement alpha dans la couche insensible du détecteur (Straggling des Anglo-Saxons).



- l'élargissement des pics dû à l'instabilité du seuil de l'amplificateur et à la dérive de l'électronique (effet de température).



Pic stable



Instabilité

IV - DETERMINATION DES ACTIVITES

L'installation spectrométrique délivre des résultats, sous forme d'histogrammes et sous forme numérique. Pour l'évaluation des aires des pics d'absorption de chaque radioisotope, il est nécessaire de tenir compte des contributions dues aux phénomènes d'autoabsorption des particules alpha d'énergies supérieures et, dans le cas d'une géométrie trop serrée d'un échantillon source déposé sur un support de masse atomique élevé, des effets de rétrodiffusion. L'équation des courbes montantes et descendantes d'un pic peut être ramenée à un polynôme de la forme :

$$P(x) = \sum_{i=p}^{i=n} b_i \frac{\sum_{\substack{s=0 \\ s \neq i}}^{s=n} (x - a_s)}{\sum_{\substack{s=0 \\ s \neq i}}^{s=n} (a_i - a_s)}$$

de 5ème, 6ème, ... nème degré qui permet le calcul immédiat des aires exactes (RICHARD P., JURAIN G. et COPPENS R. - 1968).

Dans le cas de l'équilibre radioactif, l'activité des différents radioisotopes doit être la même ($\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2 = \dots = \lambda_n N_n$) et le pic triple $U_{II} + Io + Ra$ doit révéler une activité 3 fois supérieure à celles des pics isolés.

Dans le cas de déséquilibre, les relations précédentes ne sont plus valables et l'étude de l'activité des différents radioisotopes permet de donner le sens et l'importance des déséquilibres.

Soient S_U, S_R, S_F, S_N, S_P les aires vraies des pics d'absorption des différents radioisotopes émetteurs alpha de la famille de l'U-Ra.

Soient T_U, T_R, T_F, T_N, T_P les aires vraies des parties descendantes de ces pics.

La déconvolution des différents pics de la courbe se fait suivant les exemples :

1°) Pic du RaC' ou du RaA - 7,67 MeV ou 5,9981 MeV

$$T_P = \int_{m_P}^{x_P} D_P(x) dx$$

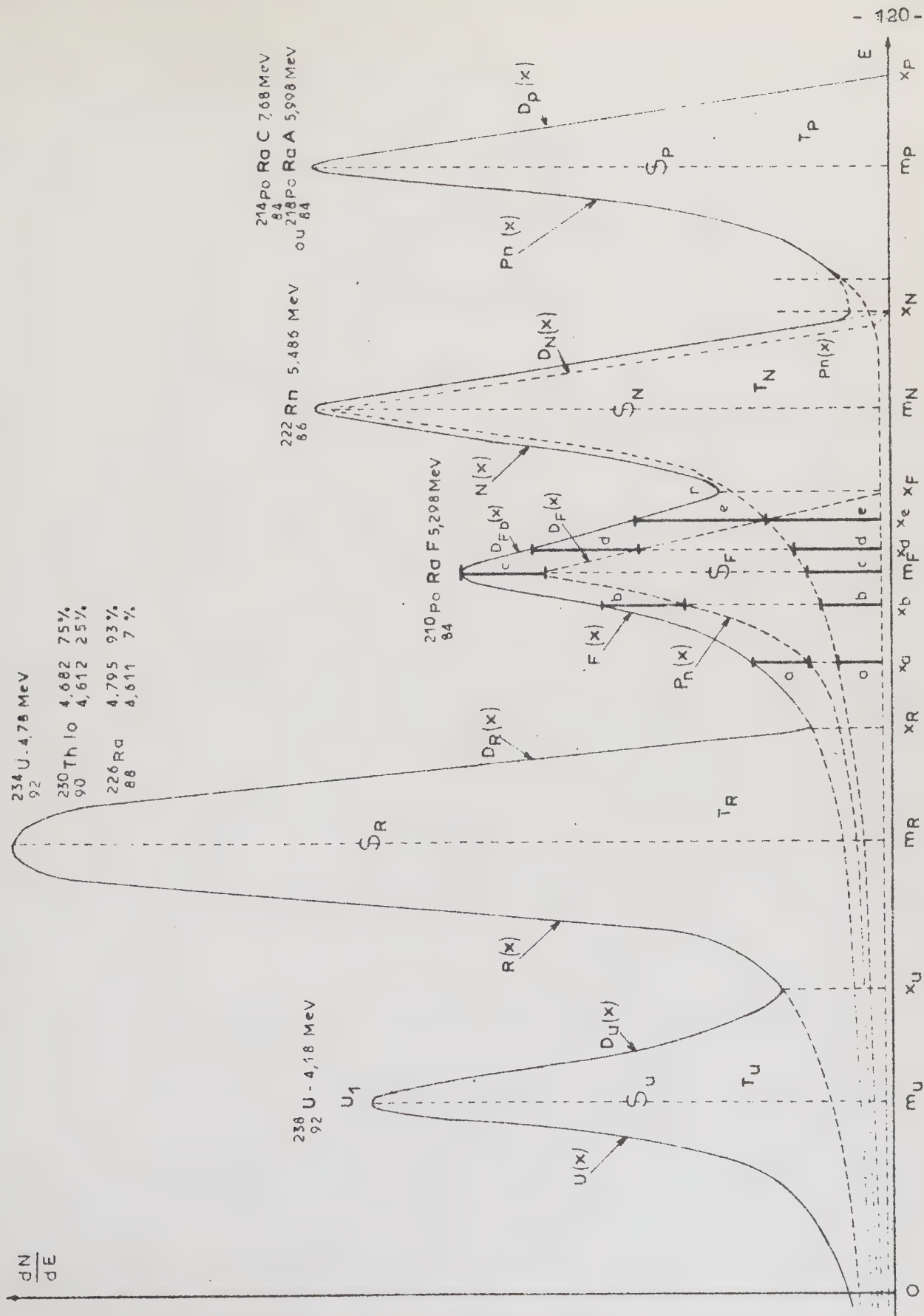
$$S_P = T_P + \int_{x=0}^{m_P} P_n(x) dx$$

2°) Pic du $^{210}_{84}\text{Po}$ (RaF) - 5,298 MeV

$$T_F = \int_{m_F}^{x_F} D_F(x) dx$$

$D_F(x)$ est obtenue en soustrayant des valeurs de $DF_b(x)$ les valeurs de $P_n(x)$ aux points d'abscisse $x_c, x_d, x_e, \dots$

$$S_F = T_F + \int_{x=0}^{m_F} P_n(x) dx$$



V - LES ÉCHANTILLONS.

1°) Minéraux uranifères en équilibre radioactif

- a) - Pechblende d'Ambert-le-Poyet (Forez)
- b) - Pechblende des Brugeauds (Limousin)

2°) Minéraux de formation récente

- a) - Chalcocite des Bois Noirs (Forez)
- b) - Uranopilite des Bois Noirs (Forez)
- c) - Minéral jaune des Bois Noirs (Forez)
- d) - Uranopilite de la Commanderie (Vendée)

3°) Minéraux remaniés

Autunite de St-Symphorien-de-Marmagne

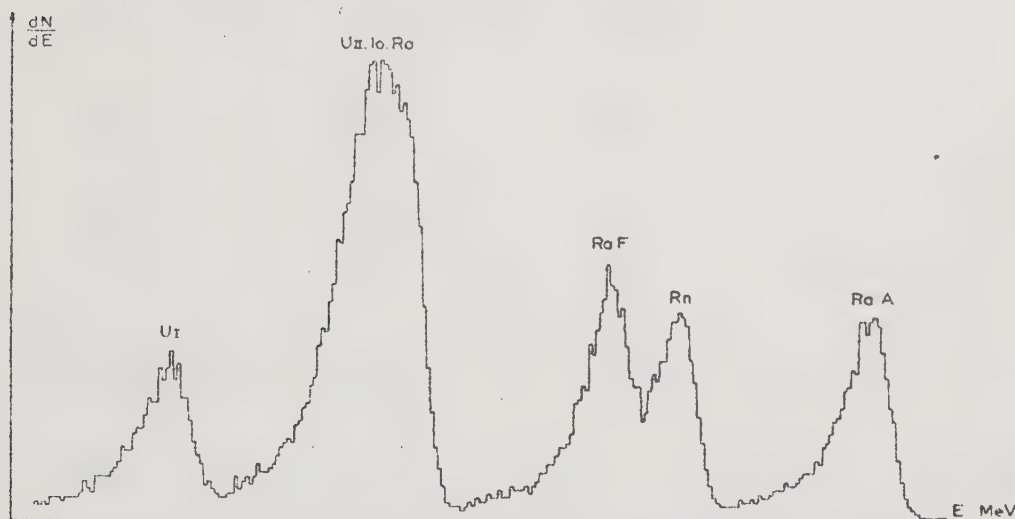
4°) Les rapports U_{234}/U_{238}

Solutions de nitrate d'uranyle

1°) Les minéraux uranifères en équilibre radioactif

a) - Pechblende du Poyet-en-Marsac de Livradois
Région d'Ambert (Forez)

Pechblende d'AMBERT le POYET (FOREZ)



Cette pechblende sphérolitique très fraîche provient de fouilles relativement peu profondes (2,50 m environ) et fait partie d'un lot d'échantillons prélevés par le Service de Minéralogie du Commissariat à l'Energie Atomique, et confiée au C.R.R. pour des mesures de géochronologie.

Analysée par spectrométrie de masse, les résultats des rapports des plombs isotopiques ont permis d'attribuer à ce minéral les âges suivants (M. ROUBAULT et G. DURAND - 1961) :

$\frac{\text{Pb}_{207}}{\text{Pb}_{206}}$	$\frac{\text{Pb}_{207}}{\text{U}_{235}}$	$\frac{\text{Pb}_{206}}{\text{U}_{238}}$	âge chimique
$173 \pm 58 \text{ M.A.}$	$161 \pm 5 \text{ M.A.}$	$161 \pm 5 \text{ M.A.}$	171 M.A.

Ces âges remarquablement concordants et qui proviennent de rapports des éléments stables finaux des filiations et des éléments "mères" indiquent un état d'équilibre qui doit être voisin de l'équilibre séculaire.

L'analyse spectrométrique du rayonnement α des radioisotopes de cette pechblende devra par conséquent montrer cet équilibre.

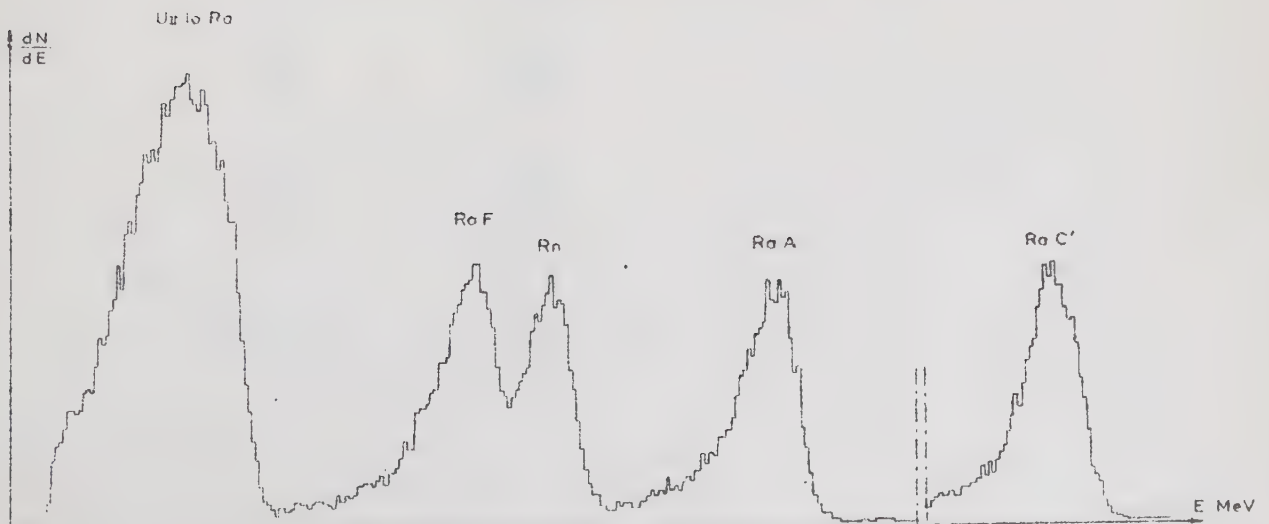
Les résultats obtenus sont les suivants :

$$\begin{aligned} \frac{\text{Ra A}}{\text{U}_I} &= \frac{45956}{45655} = 1.006 \quad \# \quad 1 \\ \frac{\text{Rn}}{\text{U}_I} &= \frac{45255}{45655} = 0.991 \quad \# \quad 1 \\ \frac{\text{Ra F}}{\text{U}_I} &= \frac{45814}{45655} = 1.003 \quad \# \quad 1 \\ \frac{\text{U}_{II} + \text{Io} + \text{Ra}}{\text{U}_I} &= \frac{140610}{45655} = 3.079 \quad \# \quad 3 \\ \frac{140610}{3} &= 46870 \quad \# \quad 45956 \quad \# \quad 45255 \quad \# \quad 45814 \end{aligned}$$

ce qui confirme les résultats de la spectrométrie de masse.

b) - BF_9 - Pechblende des Brugeauds - Division de la
Crouzille (Limousin)

Pechblende BF_9 LES BRUGEAUDS - LIMOUSIN.



Cet échantillon de pechblende provient du niveau -224 de la mine des Brugeauds.

Il fait partie d'un lot d'échantillons prélevés à différentes profondeurs de la mine en vue de datations géochronologiques par étude des rapports des plombs isotopiques. Les âges calculés d'après ces rapports sont les suivants :

$\frac{\text{Pb}_{207}}{\text{Pb}_{206}}$	$\frac{\text{Pb}_{207}}{\text{U}_{235}}$	$\frac{\text{Pb}_{206}}{\text{U}_{238}}$	Age chimique Pb rad/u 0,02751
$211 \pm 51 \text{ M.A.}$	$197 \pm 4,5 \text{ M.A.}$	$197 \pm 0,4 \text{ M.A.}$	soit 209 M.A.

Comme précédemment, il s'agit d'un échantillon montrant des âges concordants (KOSZTOLANYI Ch. - 1965).

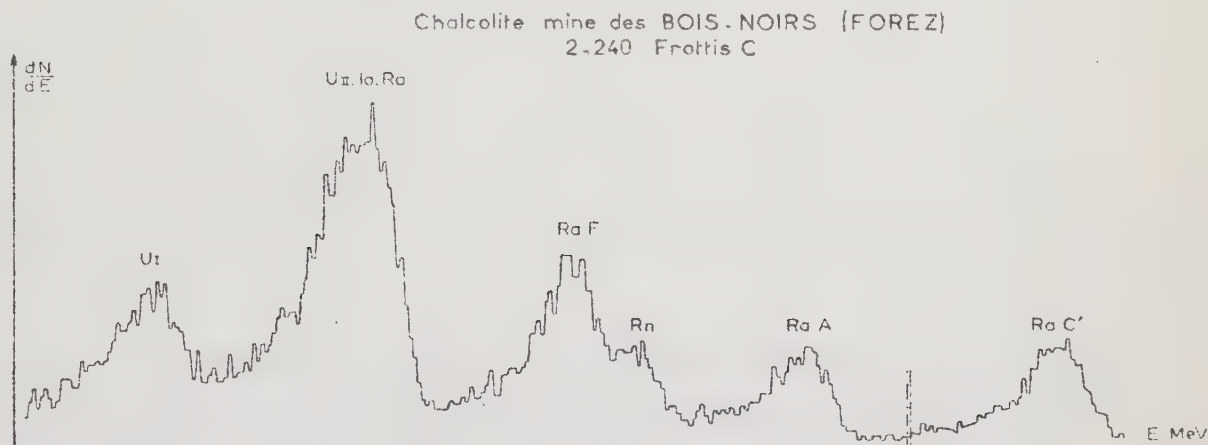
Les résultats obtenus par spectrométrie α montrent également l'état d'équilibre séculaire de la famille Uranium-radium, ils sont les suivants :

$\frac{\text{RaC}'}{\text{U}}$	=	$\frac{24348}{24527}$	=	0,992	#	1
$\frac{\text{Ra A}}{\text{U}_1}$	=	$\frac{24312}{24527}$	=	0,991	#	1
$\frac{\text{Rn}}{\text{U}_1}$	=	$\frac{24422}{24527}$	=	0,995	#	1
$\frac{\text{RaF}}{\text{U}_1}$	=	$\frac{24593}{24527}$	=	1,002	#	1
$\frac{\text{U}_{\text{II}} + \text{Io} + \text{Ra}}{\text{U}_1}$	=	$\frac{73714}{24527}$	=	3,005	#	3

2°) Minéraux de formation récente

Minéraux jaunes de la mine des Bois Noirs (Forez)

a) - Chalcolite : (N° 2 - 240 - Frottis C) de la mine des Bois Noirs. Formation Besbre exploitée ; niveau -240.

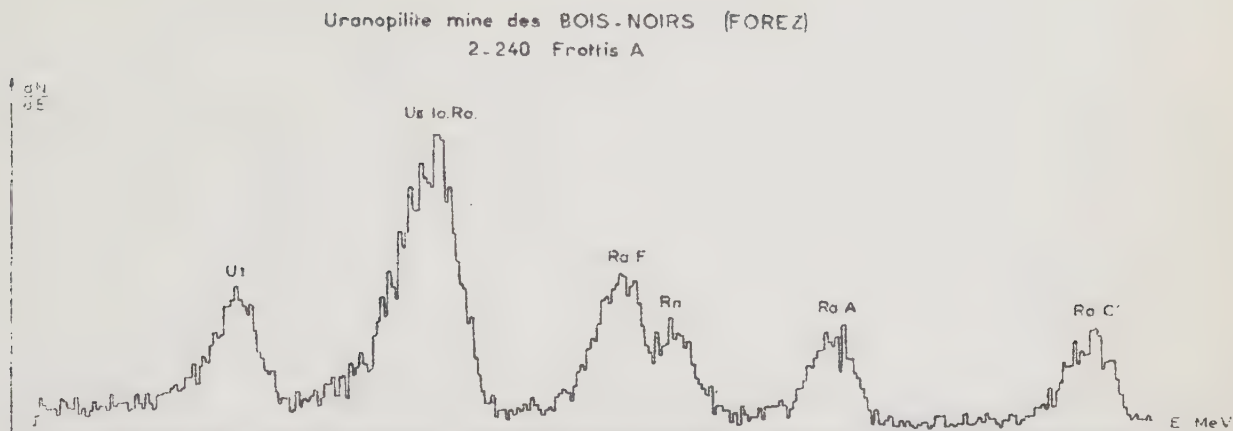


Les résultats sont les suivants :

$$\begin{aligned} \frac{\text{Ra C}' }{U_I} &= 0,628 < 1 \\ \frac{\text{Ra A} }{U_I} &= 0,622 < 1 \\ \frac{\text{Ra F} }{U_I} &= 0,661 < 1 \\ \frac{\text{Rn} }{U_I} &= 0,673 < 1 \\ \frac{U_{II} + \text{Io} + \text{Ra} }{U_I} &= 2,835 < 3 \end{aligned}$$

Les valeurs $0,628 \neq 0,622 \neq 0,661 \neq 0,673$ indiquent un équilibre du groupe Radium radon Plomb, et le déficit $2,835 < 3$ indique qu'il s'agit d'un minéral jeune qui n'a pas encore atteint l'âge d'équilibre.

b) - Uranopilite (B.N. 2 - 240. Frottis A Fluorescence jaune)



Cette uranopilite bien cristallisée en baguettes dans les fissures du minerai présente les mêmes éléments d'équilibre que ceux de la chalcopite précédente, les résultats sont :

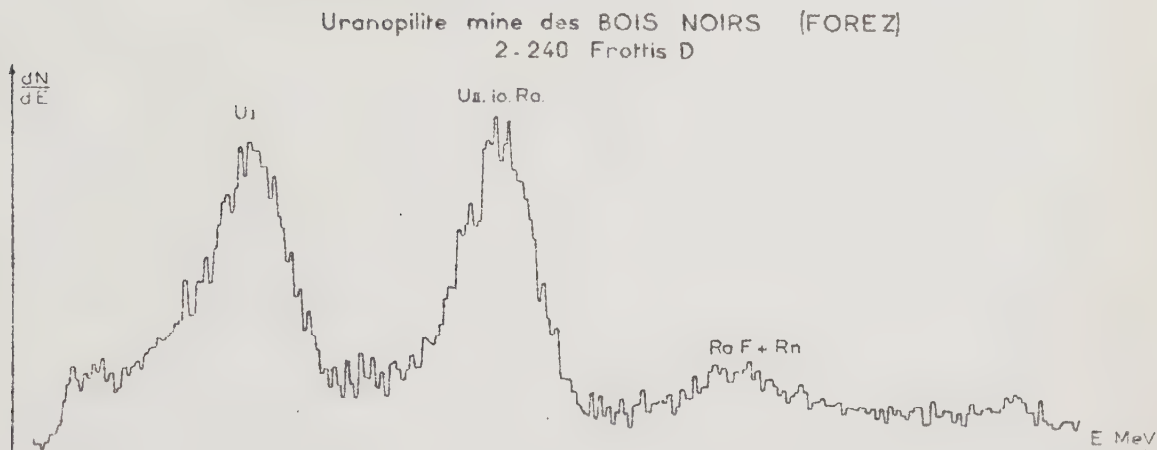
$$\frac{\text{Ra A}}{U_T} = 0,643 < 1$$

$$\frac{\text{Ra F}}{U_T} = 0,516 < 1$$

$$\frac{\text{Rn}}{U_T} = 0,673 < 1$$

$$\frac{U_{TT} + \text{To} + \text{Ra}}{U_T} = 2,501 < 3$$

c) - Minéral jaune (B.N. 2 - 240. Frottis D - enduit-fluorescence jaune).



Ce minéral se présente en enduit sur des diaclases de la roche et prélevé à 1,50 m de distance de la chalcolite et de l'uranopilite (Frottis A et C) dans le secteur exploité et rapporté à l'uranopilite ; il présente les valeurs suivantes :

$$\frac{Ra\ A}{U_T} = 0,072$$

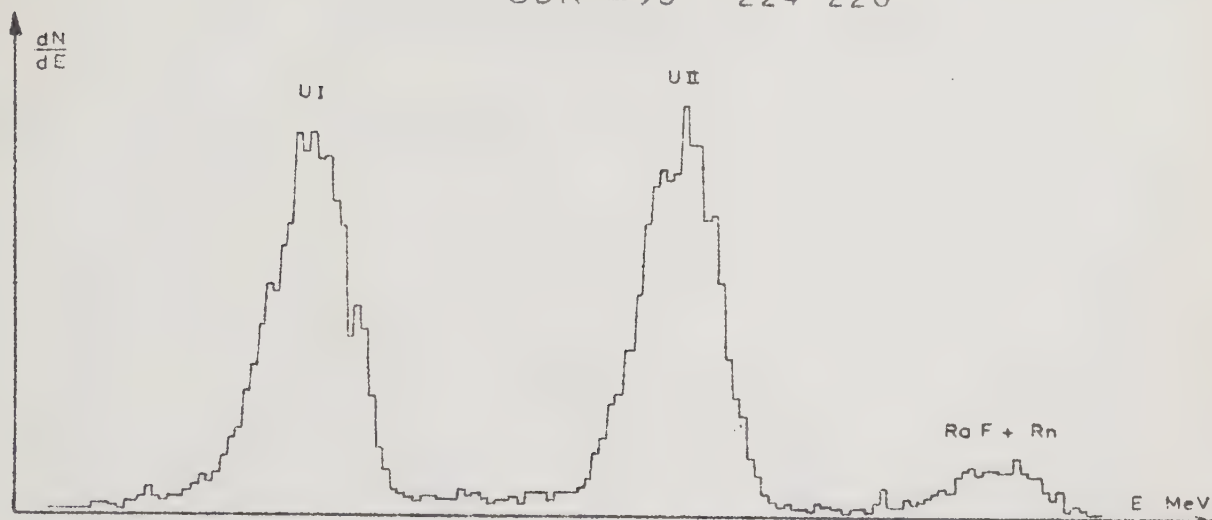
$$\frac{Ra\ F + Rn}{2\ U_T} \neq 0,072$$

$$\frac{U_{TII} + To + Ra}{U_T} = 1,033 \neq \frac{U_{234}}{U_{238}}$$

Le dernier rapport indique un déficit total de l'To (période 80 000 ans) et du Radium. Il s'agit donc d'un minéral exclusivement uranifère de formation quasi-extemporanée.

d) - Uranopilite (C.D.R. - 95 . 224-226)

Uranopilite mine de la COMMANDERIE (VENDEE)
CDR -95 224 226

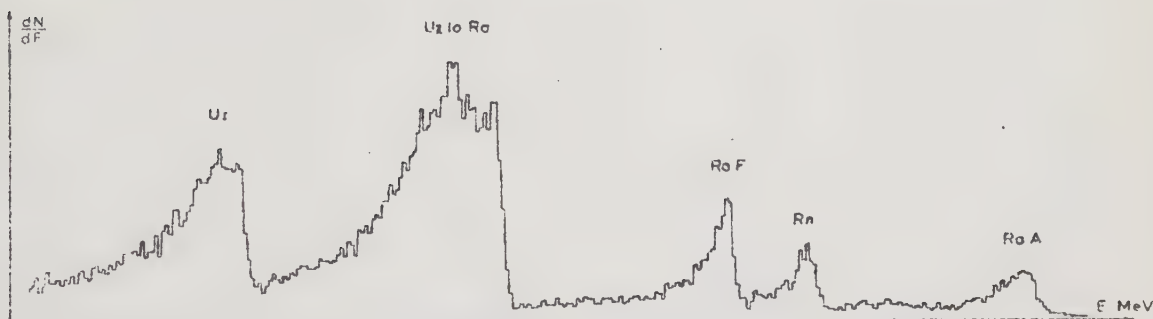


Cette uranopilite prélevée au niveau - 95 m dans la mine de la Commanderie (Vendée) s'est formée en placage sur une fissure humide et minéralisée.

L'analyse ne révèle que la présence des deux isotopes de l'uranium ^{238}U et ^{234}U et un pic à peine perceptible des descendants du radium.

3°) Minéral remaniéAutunite de St-Symphorien-de-Marmagne (Autunois)

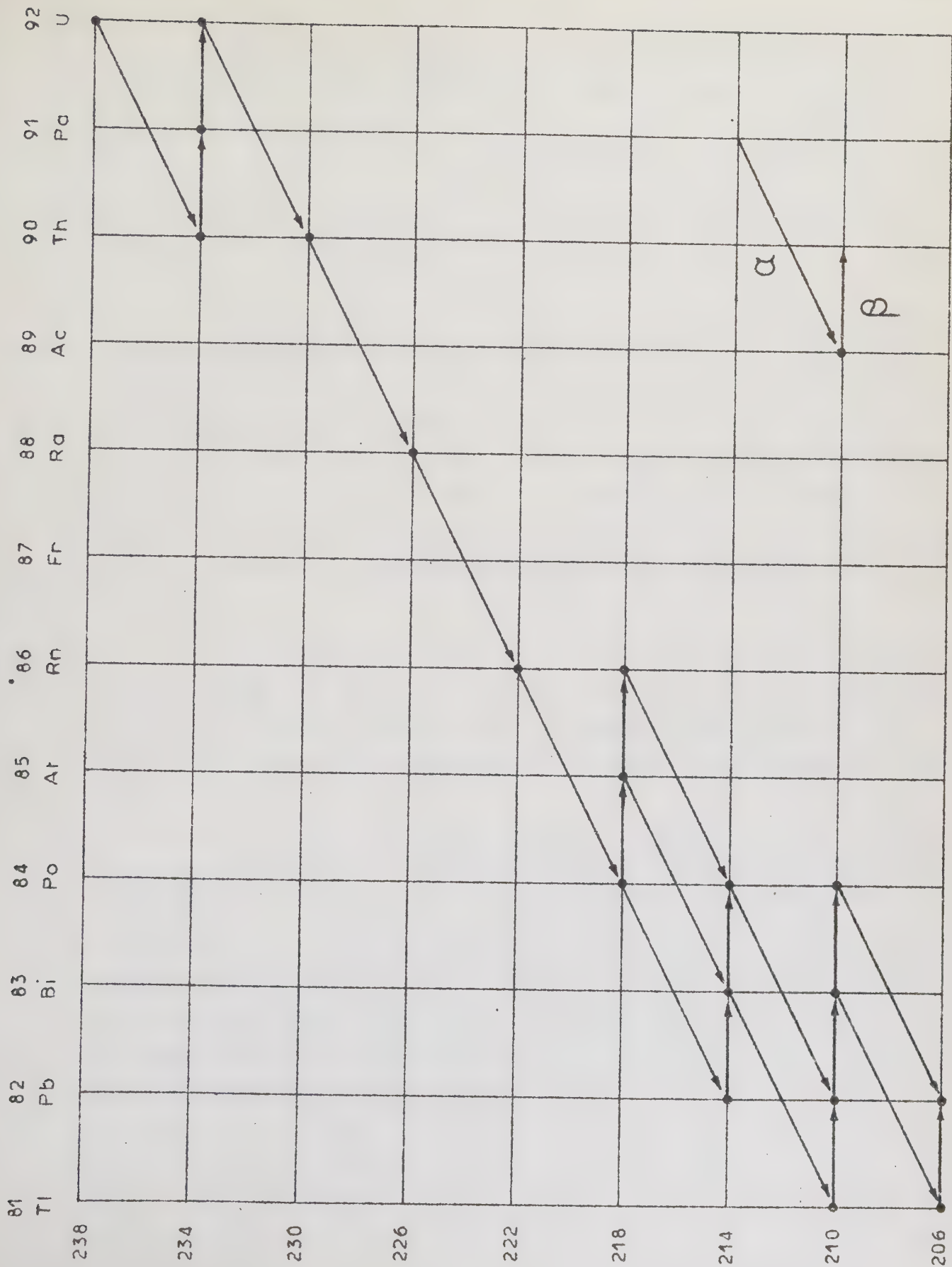
Autunite de St SYMPHORIEN de MARMAGNE [AUTUNOIS]



Cet échantillon appartient au Musée des Sciences de la Terre de Nancy et provient de la collection MARLOT.

Les résultats permettant de déterminer son état d'équilibre sont :

$$\begin{array}{rclcl}
 \frac{Ra\ A}{U_T} & = & \frac{1217}{4922} & = & 0,247 & \ll 1 \\
 \\
 \frac{Rn}{U_T} & = & \frac{1241}{4922} & = & 0,252 & \ll 1 \\
 \\
 \frac{Ra\ F}{U_T} & = & \frac{1759}{4922} & = & 0,357 & \ll 1 \\
 \\
 \frac{U_{TT} + Th + Ra}{U_T} & = & \frac{11314}{4932} & = & 2,298 & < 3 \\
 \\
 \frac{Ra\ F}{Rn} & \neq & \frac{Ra\ F}{Ra\ A} & \approx & 1,430 & > 1 \\
 \\
 \frac{Ra\ A}{Rn} & & & = & 1,019 & \neq 1
 \end{array}$$



Cette autunite montre un cas de déséquilibre complexe par les discordances entre les activités de ses différents radioisotopes,

1°) - Le rapport $\frac{U_{II} + Io + Ra}{U_I}$ très différent de 3 indique,

si l'on admet un équilibre entre les deux isotopes de l'uranium ^{238}U et ^{234}U (U_{II}), un déficit de la somme $Io + Ra$.

Si l'équilibre avait été rompu par les pertes de radon (gaz) au cours de la préparation de l'échantillon, nous devrions néanmoins trouver une activité du ^{210}Po (Ra F) très peu différente de celle de ^{238}U ; le Ra F étant issu, par intermédiaire du ($^{210}_{83}Bi$) Ra E (période 5 jours) du Ra D ($^{210}_{82}Pb$) dont la période est de 22 ans et qui, par conséquent décroît très lentement eu regard des durées de manipulation. Or le rapport $\frac{Ra F}{U_I} = 0,357$ est très différent de 1, on peut donc déjà dire qu'il y a déficit de Ra F dans la filiation de l'uranium formant l'autunite.

2°) - Le radon et le Ra A sont en équilibre entre eux mais les rapports $\frac{Rn}{U_I}$ et $\frac{Ra A}{U_I}$ sont nettement inférieurs à l'unité, or le radon et le Ra A se mettent très rapidement en équilibre avec le Radium 226 ; on en déduit que c'est le radium qui est en déficit dans la somme $Io + Ra$.

3°) - $1 > \frac{Ra F}{U_I} > \frac{Ra A}{U_I} \neq \frac{Rn}{U_I}$ il y a donc, dans cette partie de la filiation, un excès de Ra F, c'est-à-dire de Ra D (^{210}Pb).

Ces trois considérations nous amènent à penser que cette autunite a reçu, au cours de sa formation, l'apport supplémentaire d'un élément ascendant du Ra D non accompagné de son élément-mère l'uranium, le radon vraisemblablement, ou qu'elle s'est formée sur un support pollué par une collection ancienne de dépôt actif.

Ceci est confirmé par le fait qu'il s'agit d'un minéral néoformé dans une aire où les remaniements et les circulations sont particulièrement importants étant donné la tectonique du gisement (H.G. CARRAT - 1962).

4°) - Les rapports U_{234}/U_{238}

Afin de vérifier la validité des réponses spectrométriques de cette technique, et devant l'impossibilité de trouver des standards d'équilibre radioactif, nous avons analysé deux échantillons de nitrate d'uranyle de commerce (PROLABO RP - Lots 1969).

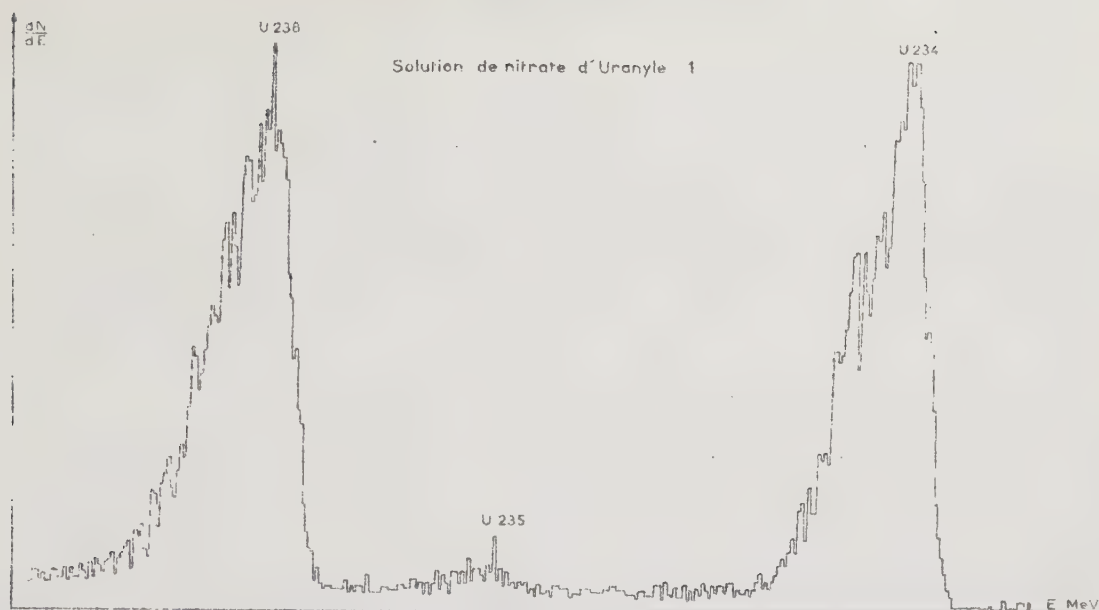
Quelques gouttes d'une solution composée de :

- 0,1 g de nitrate d'uranyle ;
- 1 g d'acétate de cellulose ;
- 100 g d'acétone.

sont déposées en couches minces sur une feuille d'aluminium et évaporées. La transformation du nitrate en oxyde U_3O_8 et la destruction des matières organiques se font en chauffant la préparation à 450° C environ.

Cette source d'uranium, contenant les isotopes 238 et 234 de l'uranium naturel doit nous permettre de trouver l'équilibre par les activités $\lambda_{238} N_{238} = \lambda_{234} N_{234}$ de ces deux isotopes. Ces nitrates, fraîchement préparés et jeunes à l'échelle de l'équilibre séculaire ne contiennent pas encore dans des proportions gênantes les descendants de la famille et de plus les isotopes 238 et 234 sont en proportions naturelles.

Les résultats obtenus sont les suivants :



$$\frac{U_{234}}{U_{238}} = \frac{3112}{3069} = 1,014$$

Solution de nitrate d'Uranyle 2



$$\frac{U_{234}}{U_{238}} = \frac{2341}{2330} = 1,004$$

CONCLUSION GENERALE

Les résultats obtenus dans ce travail mettent en évidence l'intérêt que peut avoir la spectrométrie alpha dans la connaissance des continuités ou des discontinuités dans la filiation des familles radioactives naturelles.

L'expérience acquise en spectrométrie alpha nous amène à attirer l'attention sur l'importance du choix non seulement de l'échantillon, mais encore des cristaux que l'on soumet à l'analyse. Dans le cas des minéraux de néoformation, très jeunes, nous avons en effet constaté parfois des différences très importantes entre l'état d'équilibre radioactif de différents cristaux distants de quelques centimètres à peine sur une formation de placage.

Il est toujours possible de déterminer un "âge" par des méthodes physiques, mais cet âge doit être interprété par le géologue. Les mesures physiques que nous venons de développer et qui sont déjà passées à l'état de routine dans nos laboratoires doivent pouvoir aider à cette interprétation.

Au point de vue métallogénie, il est également très intéressant de comprendre la façon dont le minéral s'est déposé et de pouvoir dire s'il a subi des remaniements depuis son dépôt.

La collaboration du physicien et du géologue se trouve donc plus que jamais nécessaire, non seulement pour l'obtention de données, mais également pour l'interprétation de ces données.

BIBLIOGRAPHIE

- BALLADA J. (1967). - Détermination analytique du Plutonium dans l'environnement. Rapport C.E.A. N° 3220.
- BARET G. (1904). - Essai de mesure de l'activité photographique de certains minéraux.
Bull. Soc. Française de Minéralogie. t. 27, pp. 63-66. Paris.
- BERTHIER, LOCARD, HOCQUENGHEM, GOIN (1966). - Réalisation et études des performances d'un spectromètre à scintillation.
Rapport C.E.A. C.E.N.GN° 2901.
- BOK J. et NOEL J.P. (1961). - Diode à barrière de surface pour la détection de particules nucléaires.
Rapport C.E.A. C.E.N. FAR N° 1956.
- BORNAND B. (1968). - Méthodes de fabrication de détecteurs au Germanium et au Silicium compensés par migration d'ions de Lithium.
Rapport C.E.A. C.E.N.S. N° BIB 90.
- BRUGE G. (1967). - Etude des états à caractère collectif des noyaux au voisinage des couches fermées par diffusion inélastique des particules alpha.
Rapport C.E.A. C.E.N.S. N° 3142.
- CARRAT H.G. (1962). - Le Morvan et l'Autunois,
in les Minerais uranifères ** . Collection bibliographie des Sciences et Techniques nucléaires sous la direction de M. ROUBAULT.
- CHABERT J. (1963). - Mesures absolues de radio-éléments émetteurs gamma par spectrométrie.
Rapport C.E.A. C.E.N.G. N° 2352.
- COPPENS R. (1949). - Etude de la radioactivité de quelques roches par l'émulsion photographique.
Thèse. Paris.
- COPPENS R. (1950). - Sur l'emploi de l'émulsion photographique pour la détermination de la radioactivité des roches par l'examen des trajectoires des rayons alpha.
Journal de Physique et le Radium. Paris. t. 11, pp. 21-32.

- COPPENS R., JURAIN G. et DURAND G. (1965). - Equilibre et déséquilibre radioactifs dans les minéraux et les roches. Conséquences géochimiques et géochronologiques.
Sc. de la Terre, t. X, n° 2, pp. 105-131. Nancy.
- COQUEMA C., COULOMB R., GOLDSTEIN M. et SCHILTZ J.C. (1961). - Méthodes de chronologie par le déséquilibre radioactif.
Rapport C.E.A. Service de Minéralogie C.E.N. FAR N° 2034.
- COULOMB R. (1955). - Dispersion des radio-éléments de la famille Uranium-Radium dans les eaux naturelles.
Bull. Soc. Française de Minéralogie, t. 78, pp. 89-96.
- COULOMB R., GIRARD P. et GOLDSZTEIN M. (1964). - Les équilibres radioactifs de minerais uranifères dans quelques problèmes de géologie appliquée.
Rapport C.E.A. - D.P. Service de Minéralogie C.E.A. FAR N° 2437.
- COUVE H. (1969). - Quelques applications de la canaligraphie.
Rapport C.E.A. Direction des Matériaux et des Combustibles Nucléaires.
C.E.N. FAR N° 3741.
- CURIE M. (1935). - Radioactivité.
Hermann. Paris.
- DIVOUX F. (1968). - Détection des neutrons par semi-conducteur dans un coeur de réacteur atomique.
Rapport C.E.A. C.E.N. G. N° 3304.
- DURAND G. (1963). - Etude des âges des minéralisations uranifères du gisement du Limouzat (Massif des Bois Noirs).
Rapport C.E.A. C.E.N. S. N° 2333.
- FRAYSSE G. et PROSDOCINI A. (1963). - Spectrométrie des réactions (n, α) et (n, f) à l'aide de détecteurs à l'état solide.
Centre commun de recherche nucléaire. Bureau central de mesures nucléaires. Etablissement de Geel - Belgique. N° EUR 222 F.
- FRIEDLING G. (1964). - Applications de méthodes statistiques à l'exploitation d'un spectre d'énergie.
Rapport C.E.A. C.E.N. Cadarache N° 2396.
- GARRETT M.W. (1954). - Solid angle subtended by a circular aperture.
The review of sci. inst. Vol. 25, n° 12 april 1954, pp. 1208-1219.

- GENTHON J.P. (1967). - La canalisation appliquée à l'étude des défauts.
Série BIB C.E.A. N° 99.
- GUILLIEN R. (1963). - Electronique. P.U.F. Paris.
- GUILLIEN R. (1963). - Physique nucléaire appliquée. Eyrolles. Paris.
- HAREUX F. (1967). Contribution à la spectrométrie des émetteurs beta à l'aide de détecteurs à jonction. Etude des spectres du ^{35}S , ^{45}Ca , ^{204}Tl , ^{36}Cl .
Rapport C.E.A. Département d'électronique générale - Laboratoire de métrologie de la radioactivité. C.E.N. S. N° 3315.
- HEE A. (1948). - Recherches sur la radioactivité d'un granite des Vosges par la méthode photographique.
Ann. géophysique. Paris t. 4, fasc. 3, pp. 242-252.
- HELLEBOIS J.M. (1968). - Les détecteurs à localisation pour particules chargées.
Rapport C.E.A. O.E.N. G. n° C.E.A. BIB 102.
- HORS M. et PHILIS C. (1967). - Détecteurs à jonction au Germanium, éléments théoriques et pratiques pour l'utilisation en spectrométrie de rayonnements.
Rapport C.E.A. C.E.N. S. N° 3251.
- JAFFEY H.A. (1954). - Solid angle subtended by a circular aperture at point and spread sources. Formulas and some tables.
The review of sci. inst. Vol. 25 n° 4. April 1954, pp. 349-354.
- JOLIOT-CURIE J. (1946). - Les radioéléments naturels.
Hermann, Paris.
- JURAIN G. (1960). - Moyens et résultats d'étude de la radioactivité due au radon dans les eaux naturelles.
Geochimica et Cosmochimica Acta. Vol. 20, pp. 51-52. Londres.
Pergamon Press.
- JURAIN G. (1961). - Sur la possibilité d'utiliser le dosage du radon des eaux souterraines dans la prospection des gîtes uranifères.
C.R.A.S. Paris, t. 252, pp. 3090-3092.
- JURAIN G. et MAILLOT J.P. (1958) (a). - Dosage radiométrique rapide de l'uranium et du thorium dans les minerais complexes.
Le Journal de Physique et le Radium. Paris, t. 19, pp. 35 A - 38 A.

- JURAIN G. (1958 b). - Signification géochimique des anomalies de teneur en radon des eaux des massifs cristallins et cristallophylliens. C.R. sommaire Soc. géol. de France n° 14, pp. 348-350.
- LEDU R. et MEITES J.D. (1967). - Formation et amplification des signaux. en spectroscopie nucléaire.
Rapport C.E.A. C.E.N. S. N° 3252.
- LEDU R. et MILTENBERGER B. (1968). - Spectrométrie alpha - Chambre d'ionisation à grille - Amélioration des caractéristiques.
Rapport C.E.A. Service de Radiochimie. Centre d'étude de Bruyères-le-Chatel N° 3566.
- MESSIER J. (1966). - Effets du rayonnement gamma du cobalt 60 et de neutrons thermiques sur du silicium P et N de haute résistivité. Possibilité de réaliser une compensation nucléaire d'un silicium du type P.
Rapport C.E.A. C.E.N. S. N° 2918.
- MOUGEL J.F. (1968). - Lissage de spectres en physique nucléaire.
Rapport C.E.A. Département d'Electronique Générale. Service d'instrumentation nucléaire N° 3662.
- NEZAMI M. (1966). - Contribution à l'étude du comportement géophysique du plomb 210 par application de la spectrométrie alpha.
Rapport C.E.A. C.E.N. S. N° 2886.
- PASCAL P. (1958). - Nouveau traité de chimie minérale.
Tome IV. Masson et Cie. Paris.
- PICCIOTTO E. (1949). - L'étude de la radioactivité des roches par la méthode photographique.
Bull. Soc. Belge Géologie et Paléontologie 58, n° 1, pp. 75-90.
- PHAIR G. and LEVINE H. (1953). - Notes on the differential leaching of uranium radium, and lead from the pitchblende in sulphuric solutions. *Economic Geology*. Laneaster. Vol. 48, pp. 358-359.
- QUERE Y. (1968). - Etude de quelques défauts cristallins à l'aide de particules alpha canalisées.
Rapport C.E.A. Direction des Matériaux et des combustibles nucléaires C.E.N. FAR N° 3606.
- Rapport annuel du Centre de Recherches Radiogéologiques. 1965-1967.

- RISTORI C. (1968). - Jonction PN pour la détection des particules alpha et bêta et les rayonnements électro-magnétiques.
Rapport C.E.A. C.E.N. G. N° BIB 97.
- ROUBAULT M. et COPPENS R. (1957). - Sur la présence d'autunite de formation récente dans les granites altérés de la région de Mallièvre - Les Epesses. C.R. AC. Sc. Paris, t. 245, pp. 101-103.
- ROUBAULT M. (1958). - Géologie de l'uranium (avec la collaboration de G. JURAIN). Paris, Masson et Cie.
- ROUBAULT M. et COPPENS R. (1959). - Influence de l'altération sur la répartition des éléments radioactifs dans les roches.
84ème Congrès des Sociétés Savantes. Dijon.
- ROUBAULT M. et DURAND G. (1961). - Ages absolus de divers minéraux uranifères français déterminés par la méthode au plomb.
Comptes rendus de l'Académie des Sc. Paris, t. 252, pp. 367-370.
- ROUX G. (1963). - Spectrométrie utilisant les détecteurs à semi-conducteur, étude et applications. Rapport C.E.A. Service de l'électronique physique C.E.N. S. N° 2388 et Rapport DE/1641/EAEP/230 Novembre 1962.
- SANDON M. (1967). - Contribution à la fabrication de détecteurs à semi-conducteurs au silicium. Rapport C.E.A. C.E.N. G. N° 2419.
- SERVANT J. (1960). - Le radon et ses dérivés à vie courte dans l'atmosphère. Rapport C.E.A. Département d'électronique Service d'électronique physique N° 1381-174.
- TALLQUIST H.J. (1931). - Tafein zur scheinbaren Grösse des Kreises Cons. Phys. Math., Soc. Scient. Fenn., Helsingfors.
- TANGUY J. (1968). - Détection des particules alpha par semi-conducteurs. Application au contrôle de l'extraction du Plutonium.
Rapport C.E.A. C.E.N. S. N° 3442.
- THOMAS J.J., TEYSIER, CHAPUIS, FRANCOIS (1968). - Etude de traces ionographiques dans les solides isolants. Centre de Phys. atomique et nucléaire de la Fac. Sc. Toulouse et Direction prot. et sec. radiologiques C.E.N. FAR N° C.E.A. BIB 122.
- YAGODA H. (1949). - Radioactive measurements with Nuclear Emulsions.
J. Wiley. New-York.

NOM DE L'ETUDIANT : Pierre RICHARD

NATURE DE LA THESE : Doctorat d'Université (Géologie nucléaire)

Vu, Approuvé

et permis d'imprimer

NANCY, le 20 Juin 1969

Le DOYEN,

J. AUBRY.

